

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF RECEIPT OF  
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

USAMI, Tadao  
No. 102, 32 Tsukimigaoka  
Yatomi-cho, Mizuho-ku  
Nagoya-shi  
Aichi 467-0035  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 24 March 1999 (24.03.99)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference NOPCT-15	International application No. PCT/JP99/00765

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD. (for all designated States except US)  
HORIKI, Seinosuke et al (for US)

International filing date : 19 February 1999 (19.02.99)  
Priority date(s) claimed : 20 February 1998 (20.02.98)  
Date of receipt of the record copy  
by the International Bureau : 05 March 1999 (05.03.99)  
List of designated Offices :

EP : AT,BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE  
National : CA,JP,US

## ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase  
☒ confirmation of precautionary designations  
☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer: K. Takeda Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**INFORMATION ON TIME LIMITS FOR ENTERING THE NATIONAL PHASE**

The applicant is reminded that the "national phase" must be entered before each of the designated Offices indicated in the Notification of Receipt of Record Copy (Form PCT/IB/301) by paying national fees and furnishing translations, as prescribed by the applicable national laws.

The time limit for performing these procedural acts is **20 MONTHS** from the priority date or, for those designated States which the applicant elects in a demand for international preliminary examination or in a later election, **30 MONTHS** from the priority date, provided that the election is made before the expiration of 19 months from the priority date. Some designated (or elected) Offices have fixed time limits which expire even later than 20 or 30 months from the priority date. In other Offices an extension of time or grace period, in some cases upon payment of an additional fee, is available.

In addition to these procedural acts, the applicant may also have to comply with other special requirements applicable in certain Offices. It is the applicant's responsibility to ensure that the necessary steps to enter the national phase are taken in a timely fashion. Most designated Offices do not issue reminders to applicants in connection with the entry into the national phase.

For detailed information about the procedural acts to be performed to enter the national phase before each designated Office, the applicable time limits and possible extensions of time or grace periods, and any other requirements, see the relevant Chapters of Volume II of the PCT Applicant's Guide. Information about the requirements for filing a demand for international preliminary examination is set out in Chapter IX of Volume I of the PCT Applicant's Guide.

GR and ES became bound by PCT Chapter II on 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, and may, therefore, be elected in a demand or a later election filed on or after 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, regardless of the filing date of the international application. (See second paragraph above.)

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

**CONFIRMATION OF PRECAUTIONARY DESIGNATIONS**

This notification lists only specific designations made under Rule 4.9(a) in the request. It is important to check that these designations are correct. Errors in designations can be corrected where precautionary designations have been made under Rule 4.9(b). The applicant is hereby reminded that any precautionary designations may be confirmed according to Rule 4.9(c) before the expiration of 15 months from the priority date. If it is not confirmed, it will automatically be regarded as withdrawn by the applicant. There will be no reminder and no invitation. Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying the designated State concerned (with an indication of the kind of protection or treatment desired) and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.

**REQUIREMENTS REGARDING PRIORITY DOCUMENTS**

For applicants who have not yet complied with the requirements regarding priority documents, the following is recalled.

Where the priority of an earlier national, regional or international application is claimed, the applicant must submit a copy of the said earlier application, certified by the authority with which it was filed ("the priority document") to the receiving Office (which will transmit it to the International Bureau) or directly to the International Bureau, before the expiration of 16 months from the priority date, provided that any such priority document may still be submitted to the International Bureau before that date of international publication of the international application, in which case that document will be considered to have been received by the International Bureau on the last day of the 16-month time limit (Rule 17.1(a)).

Where the priority document is issued by the receiving Office, the applicant may, instead of submitting the priority document, request the receiving Office to prepare and transmit the priority document to the International Bureau. Such request must be made before the expiration of the 16-month time limit and may be subjected by the receiving Office to the payment of a fee (Rule 17.1(b)).

If the priority document concerned is not submitted to the International Bureau or if the request to the receiving Office to prepare and transmit the priority document has not been made (and the corresponding fee, if any, paid) within the applicable time limit indicated under the preceding paragraphs, any designated State may disregard the priority claim, provided that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Where several priorities are claimed, the priority date to be considered for the purposes of computing the 16-month time limit is the filing date of the earliest application whose priority is claimed.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

USAMI, Tadao  
No. 102, 32 Tsukimigaoka  
Yatomi-cho, Mizuho-ku  
Nagoya-shi  
Aichi 467-0035  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 14 April 1999 (14.04.99)	
Applicant's or agent's file reference NOPCT-15	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
International application No. PCT/JP99/00765	International filing date (day/month/year) 19 February 1999 (19.02.99)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 20 February 1998 (20.02.98)
Applicant NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c)** which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c)** which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
20 Febr 1998 (20.02.98)	10/56090	JP	08 Apr 1999 (08.04.99)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  Carlos Naranjo  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

### NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

USAMI, Tadao  
102, 32, Tsukimigaoka  
Yatomi-cho, Mizuho-ku  
Nagoya-shi  
Aichi 467-0035  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 26 August 1999 (26.08.99)		
Applicant's or agent's file reference NOPCT-15		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP99/00765	International filing date (day/month/year) 19 February 1999 (19.02.99)	Priority date (day/month/year) 20 February 1998 (20.02.98)
Applicant NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

EP,JP,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CA

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 26 August 1999 (26.08.99) under No. WO 99/42516

#### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

#### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

**NOTIFICATION CONCERNING  
THE FILING OF AMENDMENTS OF THE CLAIMS**  
(PCT Administrative Instructions, Section 417)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

USAMI, Tadao  
No. 102, 32 Tsukimigaoka  
Yatomi-cho, Mizuho-ku  
Nagoya-shi  
Aichi 467-0035  
JAPON

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 02 July 1999 (02.07.99)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
<b>Applicant's or agent's file reference</b> NOPCT-15	
<b>International application No.</b> PCT/JP99/00765	<b>International filing date</b> (day/month/year) 19 February 1999 (19.02.99)
<b>Applicant</b> NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified that amendments to the claims under Article 19 were received by the International Bureau on:

29 June 1999 (29.06.99)

2. This date is within the time limit under Rule 46.1.

Consequently, the international publication of the international application will contain the amended claims according to Rule 48.2(f), (h) and (i).

3. The applicant is reminded that the international application (description, claims and drawings) may be amended during the international preliminary examination under Chapter II, according to Article 34, and in any case, before each of the designated Offices, according to Article 28 and Rule 52, or before each of the elected Offices, according to Article 41 and Rule 78.

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorised officer

Susumu Kubo  
Telephone No.: (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

[WE CLAIM]

Sub 91  
1. A material to be molded consisting of a porous material in which thermosetting resin(s) of B-stage is(are) impregnated.

2. A material to be molded in accordance with Claim 1, wherein said thermosetting resin is condensation polymer of phenolic compound and aldehyde and/or aldehyde donor at B-stage.

Sub 92  
3. A material to be molded in accordance with Claim 2, wherein said condensation polymer is produced by condensation of phenolic compound and aldehyde and/or aldehyde donor by using ammonia and/or amine.

4. A material to be molded in accordance with Claim 2 or 3, wherein said condensation polymer is partially or wholly sulfomethylated and/or sulfimethylated.

Sub 93  
5. A material to be molded in accordance with Claim 1, 2, 3 or 4, said material to be molded is in the shape of sheet.

6. A molded material consisting of a base sheet and a cured material of Claim 5 laminated partially or wholly on said base sheet as a surface layer wherein thermosetting resin impregnated in said material of Claim 5 is cured.

7. An interior material consisting of a base sheet made of cured materials of Claim 1, 2, 3 or 4 and a surface layer laminated on said base sheet.

8. An interior material in accordance with Claim 7, wherein said base sheet and said surface layer are bonded together by an adhesive dotted in the

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

lamination interface.

93  
Cont.

9. A manufacturing method of a material to be molded comprising impregnating a precondensation polymer solution of a thermosetting resin into a porous material and heating and drying said porous material to condensate slightly said precondensation polymer to make it at B-stage.

10. A method in accordance with Claim 9, wherein said precondensation polymer solution of said thermosetting resin is foamed chemically and/or mechanically and said porous material is contacted with said foamed precondensation polymer solution and then said porous material is pressed to impregnate said foamed precondensation polymer solution into said porous material.

11. A method in accordance with Claim 9 or 10, said prepolymer is a phenolic precondensation polymer produced by condensation of phenolic compound and aldehyde and/or aldehyde donor.

12. A method in accordance with Claim 11, said phenolic compound and aldehyde and/or aldehyde donor are condensated by using ammonia and/or amine.

13. A method in accordance with Claim 11 or 12, said prepolymer of phenolic resin is partially or wholly sulfomethylated and/or sulfimethylated by adding a sulfomethylation reagent and/or a sulfimethylation reagent at any stage.

Original  
International  
Claims  
BC 4/27/02

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類6 C08J 5/24, B32B 5/28, B29B 5/10 // B29K 105:06</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO99/42516</p> <p>(43) 国際公開日 1999年8月26日(26.08.99)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP99/00765</p> <p>(22) 国際出願日 1999年2月19日(19.02.99)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平10/56090 1998年2月20日(20.02.98)</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 名古屋油化株式会社 (NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD.)[JP/JP] 〒476-0001 愛知県東海市南柴田町の割213番地の5 Aichi, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 堀本清之助(HORIKI, Seinosuke)[JP/JP] 小川正則(OGAWA, Masanori)[JP/JP] 紀岡宣彦(KIOKA, Norihiko)[JP/JP] 梶田武彦(KAJITA, Takehiko)[JP/JP] 伊藤邦矩(ITO, Kuninori)[JP/JP] 〒476-0001 愛知県東海市南柴田町の割213番地の5 名古屋油化株式会社内 Aichi, (JP)</p>		<p>(74) 代理人 弁理士 宇佐見忠男(USAMI, Tadao) 〒467-0035 愛知県名古屋市瑞穂区弥富町月見ヶ丘32番地 102号 Aichi, (JP)</p> <p>(81) 指定国 CA, JP, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書 補正書</p>
<p>(54)Title: MOLDING MATERIAL, INNER MATERIAL USING THE SAME, AND METHOD FOR PRODUCING THE SAME</p> <p>(54)発明の名称 成形材料、それを用いた内装材及び成形材料の製造方法</p> <div data-bbox="440 1331 1175 1709"> </div> <p>(57) Abstract A molding material which not only can be stored for a long period and has good moldability, but also can be used for producing a molded product having excellent thermal resistance is intended. For such purpose, there is provided a molding material comprising a porous material impregnated with a thermosetting synthetic resin being in B state, and a method for producing a molding material characterized in that a porous material is impregnated with an early stage condensate of a thermosetting synthetic resin, and the resultant mixture is heated, to thereby dry the porous material and at the same time render the condensate to be in B state by somewhat enhancing the degree of condensation.</p>		

本発明の課題は、本発明の課題は、長期間保管でき、良好な成形性を有するとともに、耐熱性に優れた成形物を得ることのできる成形材料を提供することである。

本発明は、上記課題を解決するために、B状態の熱硬化性合成樹脂を含浸した多孔質材料からなることを特徴とする成形材料を提供するものであり、更には、熱硬化性合成樹脂の初期縮合物を多孔質材料に含浸せしめ、該多孔質材料を加熱乾燥すると共に該初期縮合物を若干縮合せしめてB状態とすることを特徴とする成形材料の製造方法を提供するものである。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール
AL	アルバニア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SI	スロヴェニア
AM	アルメニア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロヴァキア
AT	オーストリア	GA	ガボン	LS	レソト	SL	シエラ・レオネ
AU	オーストラリア	GB	英国	LT	リトアニア	SN	セネガル
AZ	アゼルバイジャン	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	TD	チャード
BB	バルバドス	CH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BE	ベルギー	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BF	ブルキナ・ファソ	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BG	ブルガリア	GW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BJ	ベナン	GR	ギリシャ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
BR	ブラジル	HR	クロアチア	ML	マリ	UA	ウクライナ
BY	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UG	ウガンダ
CA	カナダ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	US	米国
CF	中央アフリカ	IE	アイルランド	MW	マラウイ	UZ	ウズベキスタン
CG	コンゴ	IL	イスラエル	MX	メキシコ	VN	ヴェトナム
CH	スイス	IN	インド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラビア
CI	コートジボアール	IS	アイスランド	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CM	カメルーン	IT	イタリア	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CN	中国	JP	日本	NZ	ニュージーランド		
CU	キューバ	KE	ケニア	PL	ポーランド		
CY	キプロス	KG	キルギスタン	PT	ポルトガル		
CZ	チェコ	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
DE	ドイツ	KR	韓国	RU	ロシア		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	SD	スーダン		
EE	エストニア	LC	セントルシア	SE	スウェーデン		



## 明 細 書

### 成形材料、それを用いた内装材及び成形材料の製造方法

#### 技術分野

本発明は、例えば自動車の内装材や建材等に使用される成形材料、それを用いた内装材、及び該成形材料の製造方法に関するものである。

#### 背景技術

この種の成形材料としては、従来から繊維シート等の多孔質材料に合成樹脂を含浸した成形材料が使用されている。該多孔質材料に含浸させる合成樹脂としては、熱可塑性合成樹脂と熱硬化性合成樹脂とがある。

該多孔質材料に合成樹脂液を含浸せしめるには、通常該合成樹脂のエマルジョン又は溶液に該多孔質材料を浸漬し、その後取り出した該多孔質材料を加熱乾燥する。

#### 発明の開示

上記従来の成形材料にあっては、熱可塑性合成樹脂が含浸されている場合には、乾燥後長期間の保管が可能であるが、耐熱性に劣る。熱硬化性合成樹脂が含浸されている場合には、耐熱性には優れるが、乾燥後長期間の保管が出来ない。

熱硬化性合成樹脂と熱可塑性合成樹脂とを多孔質材料に混合含浸せしめ、乾燥時に該熱硬化性合成樹脂を完全硬化させる改良法も提供されている。このような改良においては、成形材料は含浸されている熱可塑性合成樹脂によって成形性を付与されており、また含浸されている熱硬化性合成樹脂は完全硬化しているから該成形材料は長期間保管出来るが、該熱硬化性合成樹脂は成形性に干渉し深絞り成形が困難であり、更に含浸されている熱可塑性合成樹脂は成形後の耐熱性に悪影響を及ぼす。

したがって、本発明の課題は、長期間保管でき、良好な成形性を有すると

ともに、耐熱性に優れた成形物を得ることのできる成形材料を提供することである。

上記課題を解決するための手段として、本発明は、B状態の熱硬化性合成樹脂を含浸した多孔質材料からなることを特徴とする成形材料を提供するものであり、更には、熱硬化性合成樹脂の初期縮合物を多孔質材料に含浸せしめ、該多孔質材料を加熱乾燥すると共に該初期縮合物を若干縮合せしめてB状態とすることを特徴とする成形材料の製造方法を提供するものである。

該成形材料では、多孔質材料に含浸されている熱硬化性合成樹脂がB状態にされているため、該成形材料は安定性に優れ、長期間保管できるとともに、短時間のホットプレスにより良好な成形性を有し、得られる成形物は形状保持性及び耐熱性に優れる。

上記熱硬化性合成樹脂は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とのB状態の縮合物であるのが望ましく、該縮合物は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とをアンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させたものであるのが望ましく、該縮合物の一部又は全部は、スルホメチル化及び／又はスルフィメチル化されているのが望ましい。

上記成形材料はシート状にすることができ、この場合、基材と、該基材の表面の一部又は全部に貼着されている該シート状の成形材料中の熱硬化性合成樹脂を硬化した硬化シートとからなり、所定形状に成形されていることを特徴とする成形材を提供することができる。

また、上記成形材料中の熱硬化性合成樹脂を硬化してなる基材と、該基材の表面に貼着されている表皮材とからなることを特徴とする内装材を提供することもでき、この場合、該基材と該表皮材とは、接着面に点状に散在されている接着剤層によって接着されているのが望ましい。

上記成形材料の製造方法においては、該熱硬化性合成樹脂の初期縮合物を該多孔質材料に含浸せしめる際に、該初期縮合物を起泡及び／又は発泡せしめて該多孔性材料に接触させ、次いで該多孔性材料を押圧することによって、該起泡及び／又は発泡せしめた初期縮合物を該多孔性材料の内部まで浸透

させるのが望ましい。また、該熱硬化性合成樹脂の初期縮合物は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを縮合させたフェノール系樹脂の初期縮合物であるのが望ましく、該フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とは、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合されるのが望ましく、更に該フェノール系樹脂の初期縮合物の一部又は全部は、任意の段階でスルホメチル化剤及び／又はスルフィメチル化剤を添加することにより、スルホメチル化及び／又はスルフィメチル化されているのが望ましい。

以下、本発明を詳細に説明する。

#### A. 成形材料

##### 〔熱硬化性合成樹脂〕

本発明に使用される熱硬化性合成樹脂としては、フェノール系樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂、尿素－メラミン共縮合樹脂等があり、通常初期縮合物の水溶液又は有機溶剤－水混合溶液として提供される。

本発明において望ましい熱硬化性合成樹脂は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体との縮合物であるフェノール系樹脂であり、特に望ましい熱硬化性合成樹脂は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させたフェノール系樹脂である。また、該フェノール系樹脂は、スルホメチル化及び／又はスルフィメチル化されているのが望ましい。

該フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させることにより、得られる初期縮合物の硬化開始温度の調節が可能となる。

また、該フェノール系樹脂をスルホメチル化及び／又はスルフィメチル化することにより、水溶液としての安定性が良好になって相分離等が生じ難くなり、硬化速度も大きくなる。

##### 〔フェノール系化合物〕

上記フェノール系化合物は、一価フェノールであってもよいし、多価フェ

ノールであってもよいし、一価フェノールと多価フェノールとの混合物であってもよい。また、本発明における熱硬化性合成樹脂は、一価フェノールとアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを縮合させた初期縮合物と、多価フェノールとアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを縮合させた初期縮合物とを共縮合させた初期共縮合物であってもよい。

〔一価フェノール〕

一価フェノールとしては、フェノールや、*o*-クレゾール、*m*-クレゾール、*p*-クレゾール、エチルフェノール、イソプロピルフェノール、キシレノール、3, 5-キシレノール、ブチルフェノール、*t*-ブチルフェノール、ノニルフェノール等のアルキルフェノール、*o*-フルオロフェノール、*m*-フルオロフェノール、*p*-フルオロフェノール、*o*-クロロフェノール、*m*-クロロフェノール、*p*-クロロフェノール、*o*-ブromoフェノール、*m*-ブromoフェノール、*p*-ブromoフェノール、*o*-ヨードフェノール、*m*-ヨードフェノール、*p*-ヨードフェノール、*o*-アミノフェノール、*m*-アミノフェノール、*p*-アミノフェノール、*o*-ニトロフェノール、*m*-ニトロフェノール、*p*-ニトロフェノール、2, 4-ジニトロフェノール、2, 4, 6-トリニトロフェノール等の一価フェノール置換体、ナフトール等の多環式一価フェノールなどが挙げられ、これら一価フェノールは単独で又は二種以上混合して使用することができる。

〔多価フェノール〕

多価フェノールとしては、レゾルシン、アルキルレゾルシン、ピロガロール、カテコール、アルキルカテコール、ハイドロキノン、アルキルハイドロキノン、フロログルシン、ビスフェノール、ジヒドロキシナフタリン等が挙げられ、これら多価フェノールは単独で又は二種以上混合して使用することができる。多価フェノールのうち好ましいものは、レゾルシン又はアルキルレゾルシンであり、特に好ましいものはレゾルシンよりもアルデヒドとの反応速度が速いアルキルレゾルシンである。

アルキルレゾルシンとしては、例えば5-メチルレゾルシン、5-エチルレゾルシン、5-プロピルレゾルシン、5-*n*-ブチルレゾルシン、4, 5

ージメチルレゾルシン、2，5ージメチルレゾルシン、4，5ージエチルレゾルシン、2，5ージエチルレゾルシン、4，5ージプロピルレゾルシン、2，5ージプロピルレゾルシン、4ーメチルー5ーエチルレゾルシン、2ーメチルー5ーエチルレゾルシン、2ーメチルー5ープロピルレゾルシン、2，4，5ートリメチルレゾルシン、2，4，5ートリエチルレゾルシン等がある。

エストニア産オイルシェールの乾留によって得られる多価フェノール混合物は安価であり、かつ5ーメチルレゾルシンのほか反応性の高い各種アルキルレゾルシンを多量に含むので、本発明において特に好ましい多価フェノール原料である。

〔アルデヒド及び／又はアルデヒド供与体〕

上記アルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とは、アルデヒド、分解するとアルデヒドを生成供与する化合物又はそれらの混合物を意味し、このような化合物としては、ホルマリン、ホルムアルデヒド、パラホルムアルデヒド、トリオキサン、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ポリオキシメチレン、クロラール、ヘキサメチレンテトラミン、フルフラール、グリオキサール、nーブチルアルデヒド、カプロアルデヒド、アリルアルデヒド、ベンズアルデヒド、クロトンアルデヒド、アクロレイン、テトラオキシメチレン、フェニルアセトアルデヒド、oートルアルデヒド、サリチルアルデヒド等の単独又は二種以上の混合物が例示される。

〔アンモニア及び／又はアミン〕

上記フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体との縮合を、アンモニア及び／又はアミンの存在下で行う場合、該アミンとしては、メチルアミン、エチルアミン、プロピルアミン、ブチルアミン、アミルアミン、ヘキシルアミン、ヘプチルアミン、オクチルアミン、ノニルアミン、デシルアミン、ウンデシルアミン、ドデシルアミン、トリデシルアミン、テトラデシルアミン、ペンタデシルアミン、セチルアミン等の脂肪族第一アミン；ジメチルアミン、ジエチルアミン、ジプロピルアミン、ジイソプロピルアミン、ジブチルアミン、ジアミルアミン等の脂肪族第二アミン；トリメチ

ルアミン、トリエチルアミン等の脂肪族第三アミン；アリルアミン、ジアリルアミン、トリアリルアミン等の脂肪族不飽和アミン；シクロプロピルアミン、シクロブチルアミン、シクロペンチルアミン、シクロヘキシルアミン等の脂環式アミン；アニリン、メチルアニリン、ジメチルアニリン、エチルアニリン、*o*-トルイジン、*m*-トルイジン、*p*-トルイジン、ベンジルアミン、ジベンジルアミン、トリベンジルアミン、ジフェニルアミン、トリフェニルアミン、 $\alpha$ -ナフチルアミン、 $\beta$ -ナフチルアミン等の芳香族アミン；その他モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、ヘキサメチレンテトラミン、ピリジン等の単独又は二種以上の混合物を使用することができる。

本発明では、特にアンモニアを使用するのが好ましい。

〔スルフィメチル化剤〕

上記フェノール系樹脂のスルフィメチル化に使用することのできるスルフィメチル化剤としては、ホルムアルデヒドナトリウムスルホキシラート（ロンガリット）、ベンズアルデヒドナトリウムキシラート等の脂肪族、芳香族アルデヒドのアルカリ金属スルホキシラート類、ナトリウムハイドロサルファイト、マグネシウムハイドロサルファイト等のアルカリ金属、アルカリ土類金属のハイドロサルファイト（亜ジチオン酸塩）類、ナトリウムエチルスルホキシラート等のアルキルスルホキシラート類、ヒドロキシメタンスルフィン酸塩等のヒドロキシアルカンスルフィン酸塩等が例示される。

〔スルホメチル化剤〕

上記フェノール系樹脂のスルホメチル化に使用することのできるスルホメチル化剤としては、亜硫酸、重亜硫酸又はメタ重亜硫酸と、アルカリ金属又はトリメチルアミンやベンジルトリメチルアンモニウム等の第四級アミンもしくは第四級アンモニウムとを反応させて得られる水溶性亜硫酸塩や、これらの水溶性亜硫酸塩とアルデヒドとの反応によって得られるヒドロキシメタンスルホン酸塩等のヒドロキシアルカンスルホン酸塩が例示される。

〔第三成分〕

上記熱硬化性合成樹脂の製造の際、必要に応じて、例えば塩酸、硫酸、オ

ルトリン酸、ホウ酸、砒酸、蟻酸、酢酸、酪酸、ベンゼンスルホン酸、フェノールスルホン酸、パラトルエンスルホン酸、ナフタリン- $\alpha$ -スルホン酸、ナフタリン- $\beta$ -スルホン酸等の無機又は有機酸、砒酸ジメチルエステル等の有機酸のエステル類、マレイン酸無水物、フタル酸無水物等の酸無水物、塩化アンモニウム、硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウム、砒酸アンモニウム、酢酸アンモニウム、リン酸アンモニウム、チオシアン酸アンモニウム、イミドスルホン酸アンモニウム等のアンモニウム塩、モノクロル酢酸又はそのナトリウム塩、 $\alpha$ ,  $\alpha'$ -ジクロロヒドリン等の有機ハロゲン化物、トリエタノールアミン塩酸塩、塩酸アニリン等のアミン類の塩酸塩、サルチル酸尿素アダクト、ステアリン酸尿素アダクト、ヘプタン酸尿素アダクト等の尿素アダクト、N-トリメチルタウリン、塩化亜鉛、塩化第2鉄等の酸性硬化剤、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化バリウム、水酸化カルシウム等のアルカリ金属やアルカリ土類金属の水酸化物、石灰等のアルカリ土類金属の酸化物、炭酸ナトリウム、亜硫酸ナトリウム、酢酸ナトリウム、リン酸ナトリウム等のアルカリ金属の弱酸塩類等のアルカリ性硬化剤、あるいはホルムアルデヒド、パラホルムアルデヒド、トリオキサン、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ポリオキシメチレン、クロラール、ヘキサメチレンテトラミン、フルフラール、グリオキサール、 $n$ -ブチルアルデヒド、カプロアルデヒド、アリルアルデヒド、ベンツアルデヒド、クロトンアルデヒド、アクロレイン、テトラオキシメチレン、フェニルアセトアルデヒド、 $o$ -トルアルデヒド、サルチルアルデヒド、メチロール尿素、メチル化メチロール尿素、尿素樹脂、メチロールメラミン、メチル化メチロールメラミン、アルキロール化トリアゾン誘導体等のアルデヒド又は分解するとアルデヒドを生成する化合物を硬化剤として混合してもよい。

上記硬化剤の他、更に必要ならば、一価フェノール系樹脂、多価フェノール系樹脂、尿素系樹脂、メラミン系樹脂等のアミノ系樹脂；天然ゴム又はその誘導体；スチレン-ブタジエンゴム、アクリロニトリル-ブタジエンゴム、クロロプレンゴム、エチレン-プロピレンゴム、イソプレンゴム、イソブレン-イソブチレンゴム等の合成ゴム；酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、

スチレン、アクリルエステル、メタクリルエステル、アクリロニトリル、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、塩化ビニル、塩化ビニリデン、ビニルピリジン等のビニル単量体の単独重合体又はこれらビニル単量体の二種以上の共重合体；ポリウレタン、ポリアミド、エポキシ樹脂、ブチラール樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、酢酸ビニル-エチレン共重合体、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレン、ポリエステル等の各種合成樹脂のエマルジョンやラテックス又は水溶液；ポリビニルアルコール、アルギン酸ナトリウム、澱粉、澱粉誘導体、ニカワ、ゼラチン、血粉、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリアクリル酸塩、ポリアクリルアミド等の水溶性高分子や天然ガム類；炭酸カルシウム、タルク、石膏、カーボンブラック、木粉、クルミ粉、ヤシガラ粉、小麦粉、米粉等の充填剤；界面活性剤；ステアリン酸、パルミチン酸等の高級脂肪酸、パルミチルアルコール、ステアリルアルコール等の高級アルコール；ブチリルステアレート、グリセリンモノステアレート等の脂肪酸のエステル類；脂肪酸アミド類；カルナバワックス等の天然ワックス類、合成ワックス類；パラフィン類、パラフィン油、シリコンオイル、シリコン樹脂、フッ素樹脂、ポリビニルアルコール、グリス等の離型剤；ヘキサン、ブタン、*n*-ペンタン、アルコール、エーテル、塩化メチレン、四塩化炭素、クロルフルオロメタン、1, 1, 2-トリクロル-1, 2, 2-トリフルオルエタン等の低沸点溶剤；アゾジカーボンアミド、ジニトロソペンタメチレンテトラミン、P, P'-オキシビス（ベンゼンスルホニルヒドラジド）、アゾビス-2, 2'-（2-メチルグロピオニトリル）等のガスを発生するもの；炭酸ガスを発生しながら酸性硬化剤と反応する物質、例えば、炭素又は重炭酸ナトリウム、カリウム、アンモニウム又はカルシウム；*n*-ペンタン、イソペンタン、ブタン、イソブタン等をマイクロカプセル化した熱可塑性膨張性微小球等の発泡剤；シラスバルーン、パーライト、ガラスバルーン、発泡ガラス、中空セラミックス等の中空粒体；発泡ポリエチレン、発泡ポリスチレン、発泡ポリプロピレン等の発泡体や発泡粒；顔料、染料、難燃剤、防炎剤、防虫剤、防腐剤、老化防止剤、紫外線吸収剤；DBP、DOP、ジシクロヘ



キシルフタレートのようなフタル酸エステル系可塑剤やその他のトリクレジルホスフェート等の可塑剤などの第三成分を添加して、共縮合や混合等により上記硬化性樹脂を変性してもよい。

〔熱硬化性合成樹脂の製造〕

上記熱硬化性合成樹脂は常法により製造することができるが、特に該熱硬化性合成樹脂として、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させたフェノール系樹脂の初期縮合物を使用する場合、該初期縮合物は、(a) 一価フェノール及び／又は多価フェノールとアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させるか、(b) 一価フェノールとアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とをアンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させた初期縮合物Aと、多価フェノールB及び／又は多価フェノールとアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とをアンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させた初期縮合物Cとを共縮合させることにより製造することができる。

一価フェノール及び／又は多価フェノールとアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体との縮合(a) では、通常一価フェノール1モルに対し、アルデヒド及び／又はアルデヒド供与体0.2～3モル、多価フェノール1モルに対し、アルデヒド及び／又はアルデヒド供与体0.1～0.8モルと、必要に応じて溶剤、第三成分、触媒と、そしてアンモニア及び／又はアミンとを添加し、液温55～100℃で8～20時間加熱反応させる。このときアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体は、反応開始時に全量加えてもよいし、分割添加又は連続滴下してもよい。

アンモニア及び／又はアミンの添加量は、フェノール系化合物に対して0.001～20重量%であるのが好ましく、特に0.01～10重量%であるのが好ましい。該アンモニア及び／又はアミンの添加量によって、得られる熱硬化性合成樹脂の初期縮合物の硬化開始温度（硬化率が急激に大きくなる温度）を調整することができる。

上記2段階の共縮合(b)を行う場合、上記方法(a)により製造した初期縮

合物Aに、多価フェノールB及び／又は上記方法(a)により製造した初期縮合物Cと、必要に応じてアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体、溶剤、錯化剤、第三成分、触媒と、そしてアンモニア及び／又はアミンとを添加し、液温60～100℃で1～10時間加熱反応させる。

このとき添加する多価フェノールの総量は、一価フェノール1モルに対して0.01～3モルであるのが好ましい。また、アンモニア及び／又はアミンの添加量は、フェノール系化合物に対して0.001～20重量%であるのが好ましく、特に0.01～15重量%であるのが好ましい。

上記錯化剤は、多価フェノールとアルデヒドとの反応性を緩和するために添加してもよい。かかる錯化剤としては、多価フェノールのヒドロキシル基に対して錯化形成能をもつケトン基又はアミド基等を有する化合物を使用することができ、例えばアセトン、カプロラクタム等が例示され、特にアセトンが好ましい。錯化剤の添加量は特に制限はないが、通常多価フェノール1モルに対し錯化剤0.4～0.8モル程度が好ましい。この錯化剤は、上記初期縮合物Cを製造する際に添加してもよい。

溶媒としては通常水が用いられるが、必要ならば更にメタノール、エタノール、n-プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、イソブタノール、s-ブタノール、t-ブタノール、n-アミルアルコール、イソアミルアルコール、n-ヘキサノール、メチルアミルアルコール、2-エチルブタノール、n-ヘプタノール、n-オクタノール、トリメチルノニルアルコール、シクロヘキサノール、ベンジルアルコール、フルフリルアルコール、テトラヒドロフルフリルアルコール、アビエチルアルコール、ジアセトンアルコール等のアルコール類、アセトン、メチルアセトン、メチルエチルケトン、メチル-n-プロピルケトン、メチル-n-ブチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジエチルケトン、ジ-n-プロピルケトン、ジイソブチルケトン、アセトニルアセトン、メチルオキシド、シクロヘキサノン、メチルシクロヘキサノン、アセトフェノン、ショウノウ等のケトン類、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、トリメチレングリコール、ポリエチレングリコール等のグリコール

類、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールイソプロピルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル等のグリコールエーテル類、エチレングリコールジアセテート、ジエチレングリコールモノエチルエーテルアセテート等の上記グリコール類のエステル類やその誘導体、1, 4-ジオキサン等のエーテル類、ジエチルセロソルブ、ジエチルカルビトール、エチルラクテート、イソプロピルラクテート、ジグリコールジアセテート、ジメチルホルムアミド等の水可溶性又は親水性有機溶剤の単独又は二種以上の混合物を添加使用することができる。

アセトン等は溶剤であると同時に、アルキルレゾルシンの錯化剤としても作用し、より穏やかな反応をもたらす。

また、熱硬化性合成樹脂として、スルホメチル化及び／又はスルフィメチル化したフェノール系樹脂の初期縮合物を使用する場合、該初期縮合物は、任意の段階でスルホメチル化剤及び／又はスルフィメチル化剤を添加して、フェノール系化合物及び／又は初期縮合物をスルホメチル化及び／又はスルフィメチル化することにより製造することができる。

スルホメチル化剤及び／又はスルフィメチル化剤の添加は、一価フェノール及び／又は多価フェノールとアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体との縮合反応前、反応中、反応後のいずれの段階で行ってもよいし、上記初期縮合物Aと多価フェノールB及び／又は初期縮合物Cとの共縮合反応前、反応中、反応後のいずれの段階で行ってもよい。

スルホメチル化剤及び／又はスルフィメチル化剤の総添加量は、フェノール系化合物1モルに対して、通常0.001～1.5モルであるが、製造される初期縮合物の硬化性、硬化後の樹脂の物性等の性能を良好に保持するためには、0.01～0.8モル程度とするのが好ましい。

このようにしてスルホメチル化及び／又はスルフィメチル化したフェノール系樹脂の初期縮合物は、溶液としての安定性が良好になって相分離等が生じ難くなり、また硬化速度が大きくなる。

〔多孔質材料〕

本発明に使用される多孔質材料としては、繊維集合体、連続気泡を有するプラスチック発泡体、プラスチックビースの焼結体等がある。

該繊維集合体を構成する繊維としては、木綿、麻、羊毛、絹、ケナフ、ヤシ繊維、竹繊維等の天然繊維、ポリアミド繊維、ポリエステル繊維、アクリル繊維、ビスコース繊維、アセテート繊維、塩化ビニル繊維、塩化ビニリデン繊維等の有機合成繊維、アスベスト繊維、ガラス繊維、炭素繊維、セラミック繊維、金属繊維、ウィスカー等の無機繊維、あるいは上記繊維を使用した繊維製品のスクラップを解繊して得られた再生繊維、あるいはこれらの繊維の二種以上の混合物、あるいはこれら繊維と200℃以下の融点を有するポリエステル繊維、ポリプロピレン繊維、ポリエチレン繊維、ポリアミド繊維等の低融点繊維との混合物等が挙げられる。

該繊維集合体は、不織布、フェルト、編織物、それらの積層物等のシート状のものであってもよいし、該シート状繊維集合体を小さく切断して得られる繊維小片や、あるいは綿状のもの、スライバ状のもの等であってもよい。該繊維集合体には、ポリエチレン粉末、ポリアミド粉末、ポリ塩化ビニリデン粉末、低融点ポリエステル樹脂粉末等のホットメルト粉末等が混合されてもよい。

上記プラスチック発泡体としては、例えば連続気泡構造を有するポリウレタン発泡体、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン発泡体、ポリ塩化ビニル発泡体、ポリスチレン発泡体、メラミン樹脂、尿素樹脂等のアミノ系樹脂発泡体、フェノール樹脂発泡体等がある。該プラスチック発泡体は、自動車の内装材基材の原反として使用される場合には通常シート状で提供されるが、用途に応じてブロック状、粒状等任意の形状にされてもよい。

#### 〔成形材料の製造〕

本発明の成形材料を製造するには、上記多孔質材料に上記熱硬化性合成樹脂の初期縮合物溶液を含浸せしめる。含浸方法としては、浸漬法、スプレー法等公知の方法が適用されるが、あらかじめ起泡及び／又は発泡させた該初期縮合物溶液中に該多孔質材料を浸漬して押圧し、該多孔質材料中に該初期

縮合物溶液を含浸させるのが好ましい。

このように起泡及び／又は発泡させた初期縮合物溶液を使用すれば、該初期縮合物溶液を水又は溶剤で希釈することなく、多孔質材料に対する該初期縮合物含浸量を調節することができ、したがって該多孔質材料中の水又は溶剤の量を減らして乾燥時間を短縮することができる。

上記初期縮合物溶液を起泡させるには、該初期縮合物溶液に空気吹込みを行うか、該初期縮合物溶液を攪拌するが、好ましくはそれら両者を同時に行い、特に好ましくは、更に起泡剤、整泡剤、泡安定剤等を添加する。起泡剤、整泡剤としては、例えば、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、脂肪酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩、アルキルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルまたはアルキルアリル硫酸エステル塩やナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物、ポリオキシエチレンアルキルリン酸エステル、特殊ポリカルボン酸型高分子界面活性剤等のアニオン性界面活性剤、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル、ポリオキシエチレン誘導体、オキシエチレンエキシプロピレンブロックコポリマー、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルアミン、アルキルアルカノールアミド等のノニオン性界面活性剤、オクタデシルアミンアセテート、イミダゾリン誘導体アセテート、ポリアルキレンポリアミン誘導体又はその塩、オクタデシルトリメチルアンモニウムクロライド、トリメチルアミノエチルアルキルアミドハロゲンイド、アルキルピリジニウム硫酸塩、アルキルトリメチルアンモニウムハロゲンイド等カチオン性界面活性剤や両性界面活性剤、シリコン系界面活性剤、フッ素系界面活性剤等の界面活性剤、浸透剤、天然油脂誘導体、グリコール類等が使用され、泡安定剤としては、ポリアクリル酸、ポリメタクリル酸、ポリアクリル酸およびポリメタクリル酸のナトリウム塩又はカリウム塩、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリ酢酸ビニル樹脂の部分鹼化

物、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース等の水溶性高分子、糖類、ステアリン酸、ステアリン酸亜鉛、パルミチン酸、長鎖脂肪酸アミド等の油滑剤等が使用される。上記起泡剤、整泡剤、泡安定剤は二種以上併用されてもよい。

上記初期縮合物溶液を発泡させるには、該初期縮合物溶液に例えば重炭酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、重炭酸アンモニウム、炭酸アンモニウム、アジド化合物等の無機化合物、ニトロソ化合物、アゾ化合物、スルホニル化合物等の発泡剤を添加し、該発泡剤の分解温度以上の温度に加熱するか、あるいはn-ペンタン、メタノール、メチルエーテル、エチルエーテル、塩化メチレン、四塩化炭素、クロルフルオルメタン等の低沸点溶剤を添加混合し、該溶剤の沸点以上に加熱して発泡させる。この場合、該初期縮合物溶液は攪拌することが望ましく、また起泡の場合と同様の起泡剤、整泡剤、浸透剤、泡安定剤等を添加してもよい。

上記空気吹込み及び／又は攪拌による起泡と、該発泡剤による発泡とは同時に行ってもよい。

上記初期縮合物溶液の起泡又は発泡倍率は、通常0.8～50倍、好ましくは2～20倍とされ、一般的には該初期縮合物溶液を含浸させる多孔質材料が低密度の場合には気泡は粗くてもよいが、高密度の場合には気泡は細かい方が望ましい。

上記初期縮合物溶液を上記多孔質材料に含浸させるには、例えば、起泡及び／又は発泡させた該初期縮合物溶液を含浸槽に充填し、該含浸槽内に該多孔質材料を浸漬し、次いで該初期縮合物溶液が付着した多孔質材料を絞りロール又はプレス盤等で押圧する。あるいは、該多孔質材料を絞りロールに送り込む直前で、起泡及び／又は発泡させた初期縮合物溶液を該多孔質材料の片面又は両面に供給する。この場合、該絞りロールの後段に更に一個又は二個以上の絞りロールを配置してもよい。また、絞りロールの配置は縦方向であっても横方向であってもよい。

このような押圧によって、多孔質材料に付着している起泡及び／又は発泡した初期縮合物溶液は、該多孔質材料の内部にまで浸透する。

上記初期縮合物を含浸した多孔質材料は加熱乾燥工程に付されるが、この工程において、該初期縮合物はB状態にされる。該初期縮合物をB状態にとどめるには、該初期縮合物溶液に添加する硬化触媒の量、加熱温度、加熱時間等を調節すればよく、通常加熱温度は40～170℃程度、加熱時間は0.1～5時間程度とされる。該加熱乾燥には、通常熱風乾燥、遠赤外線乾燥、高周波加熱乾燥等が適用される。

このように多孔質材料に含浸された熱硬化性合成樹脂の初期縮合物をB状態にすることにより、該熱硬化性合成樹脂の安定性が向上して成形材料の長期間保存が可能となるとともに、該熱硬化性合成樹脂の水分含有量が少なくなるため、成形時間が短縮され、かつホットプレスによって成形した際にも水分の蒸気によるパンク現象が起らない。また、該成形材料をホットプレス成形した後には、該熱硬化性合成樹脂は完全硬化するため、形状保持性及び耐熱性に優れた成形物が得られる。

上記熱硬化性合成樹脂として、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とを、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させたフェノール系樹脂を使用した場合、該フェノール系樹脂の硬化率は所定の温度を境にして急激に大きくなるため、該フェノール系樹脂の初期縮合物（B状態）を含浸した成形材料は、該所定の温度未満において保存安定性に優れ、該所定の温度以上において硬化速度に優れる。したがって、該成形材料は、該所定の温度にならない限り長期保存が可能であり、また該所定の温度に加熱すれば短時間で硬化させることができる。

#### 〔成形〕

本発明の成形材料はB状態の熱硬化性合成樹脂を含浸しているので成形性を有し、通常、所望の形状を有する下型及び上型を使用したホットプレスによって成形される。ホットプレスの条件は、該B状態の熱硬化性合成樹脂が完全硬化する温度及び時間に設定され、プレス圧は通常1～10kg/cm<sup>2</sup>とされる。このとき、他のシートと重ね合わせてホットプレスし、積層成形材としてもよい。

得られる成形材は、特に、ドアトリム、ダッシュボード、天井材、床材、

インシュレーターフード、ダッシュインナー、ダッシュアウター、エンジンアンダーカバー、トランクサイドトリム等の車輛用の内装材、又は建築用材等に有用である。

## B. 成形材

本発明の成形材は、基材の表面の一部又は全部にシート状の上記成形材料が貼着され、所定形状に成形されてなるものであり、該シート状の成形材料中の熱硬化性合成樹脂は硬化しており、もって該シート状の成形材料は硬化シートとなっている。

該基材は、成形性を有するものであればいかなるものであってもよく、例えば、各種のプラスチック発泡体、パーティクルボード、ファイバーボード、フェルト、プラスチックシート、低融点繊維含有不織布、ガラスウール、石綿等が挙げられる。

該プラスチック発泡体としては、例えば、ポリウレタン発泡体、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン発泡体、ポリ塩化ビニル発泡体、ポリスチレン発泡体、メラミン樹脂発泡体、尿素樹脂発泡体、フェノール樹脂発泡体等がある。

該成形材の製造方法としては、第1に、第1図に示すように、基材11を所定の形状に成形するとともに、シート状成形材料を該基材11の形状に適合する形状に硬化成形し、該成形した硬化シート12を該基材11の表面に貼着する方法がある。

該硬化シート12を該基材11の表面に貼着するには、接着剤を使用したり、該基材11が熱可塑性の材料からなる場合には、加熱融着すればよい。

第2には、第2図に示すように、シート状成形材料12aと、基材の成形前の原体11aとを重ね合わせ、所定の形状を有する上型13と下型14とでホットプレス成形する方法がある。このとき、基材（原体）の材料によっては、該硬化シート12aと該基材原体11aとの間に、ホットメルトシートや天然樹脂、天然ゴム、合成樹脂、合成ゴム等の接着剤を介在させてもよい。

第3には、第3図に示すように、シート状成形材料をあらかじめ所定の形状に硬化成形し、該成形した硬化シート12を成形型15の型面151にセットす



るとともに、樹脂注入口152 から該成形型15内に発泡樹脂液Rを注入、硬化する方法がある。

発泡樹脂液Rの種類としては、例えば、ポリウレタン発泡樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン発泡樹脂、ポリ塩化ビニル発泡樹脂、ポリスチレン発泡樹脂、メラミン発泡樹脂、尿素発泡樹脂、フェノール発泡樹脂等がある。

以上のようにして得られる本発明の成形材は、種々の用途に用いることができ、例えば、壁材；ベッドの芯材；椅子、ソファ、シート等のクッション材；内装材；各種パッド等として好適である。

本発明の成形材において基材の表面に貼着された硬化シートは、単なる繊維シートと異なり成形性に優れるため、該成形材は所望の形状に成形することができる。

### C. 内装材

本発明の内装材は、上記成形材料中の熱硬化性合成樹脂を硬化してなる基材と、該基材の表面に貼着されている表皮材とからなるものである。

該表皮材としては、例えば、人工皮革、レザー、繊維編織物、不織布、あるいはこれらとポリウレタン発泡体、ポリエチレン発泡体、ポリプロピレン発泡体、ポリスチレン発泡体、ポリ塩化ビニル発泡体等のプラスチック発泡体との積層材等がある。

該表皮材は、接着剤によって上記基材に貼着される。該接着剤としては、アクリル系接着剤、合成ゴム系接着剤、エラストマー系接着剤、酢酸ビニル系接着剤、塩化ビニル系接着剤、尿素樹脂系接着剤、メラミン樹脂系接着剤、フェノール樹脂系接着剤、エポキシ樹脂系接着剤等、通常使用される接着剤である。該接着剤は溶液型あるいはエマルジョン型として提供される。

更に上記接着剤層に使用される接着剤としては、ホットメルト型接着剤がある。該ホットメルト型接着剤としては、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-エチルアクリレート共重合体等のポリオレフィン系樹脂、あるいは該ポリオレフィン系樹脂の変性物、ポリウレタン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂等の単独

又は二種以上の混合物が使用される。

該ホットメルト接着剤は溶液型、エマルジョン型として提供される他、該ホットメルト接着剤粉末を水に分散させた分散液型としても提供される。

上記接着剤層は表皮材及び／又は基材の接着面に点状に散在されているのが好ましい。このように、表皮材と基材とを点状に散在している接着剤層によって接着すれば、該接着剤層の剛性は内装材の成形形状や表面の凹凸形状に影響せず、したがって該内装材の成形形状や凹凸形状がシャープに成形される。また表皮材が通気性を有する場合は、該接着剤層も通気性を有するので、優れた防音性を有する内装材が得られる。

該表皮材及び／又は基材の接着面に接着剤層を点状に散在せしめるには、例えばスプレー塗装法、凸版印刷法、シルクスクリーン印刷法等が適用されるが、接着面にマスキングシートを被着しておいてからスプレー、ナイフコーター、ロールコーター、フローコーター等で接着剤を塗布し、その後マスキングシートを剥離する方法が適用されてもよい。

上記表皮材及び／又は基材の接着面に接着剤層を点状に散在させる望ましい方法としてはホットメルト接着剤粉末分散液をスプレー塗布する方法である。

上記ホットメルト接着剤粉末分散液に使用される該ホットメルト接着剤粉末は通常20～400 メッシュ程度のサイズの粉末とされ、該ホットメルト接着剤粉末は通常水に5～60重量%の範囲で分散される。該水には例えばメチルセルローズ、メトキシセルローズ、エチルセルローズ、エトキシセルローズ、カルボキシメチルセルローズ等の増粘剤の一種又は二種以上、例えば高級アルコールサルフェート（Na塩又はアミン塩）、アルキルアリルスルホン酸塩（Na塩又はアミン塩）、アルキルナフタレンスルホン酸塩（Na塩又はアミン塩）、アルキルナフタレンスルホン酸塩縮合物、アルキルホスフェート、ジアルキルスルホサクシネート、ロジン石鹼、脂肪酸塩（Na塩又はアミン塩）等のアニオン性界面活性剤、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェノールエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエステル、ポリオキシエチレンアルキルアミン、ポリオキシエチレ

ンアルキロールアミン、ポリオキシエチレンアルキルアמיד、ソルビタンアルキルエステル、ポリオキシエチレンソルビタンアルキルエステル等のノニオン性界面活性剤、オクタデシルアミンアセテート、イミダゾリン誘導体アセテート、ポリアルキレンポリアミン誘導体又はその塩、オクタデシルトリメチルアンモニウムクロライド、トリメチルアミノエチルアルキルアミドハロゲンイド、アルキルピリジニウム硫酸塩、アルキルトリメチルアンモニウムハロゲンイド等のカチオン性界面活性剤等の界面活性剤の一種又は二種以上が分散剤として添加されてもよい。上記分散剤としては、特に曳糸性増粘剤を使用することが望ましい。該曳糸性増粘剤としては、例えばポリアクリル酸、ポリメタクリル酸、アルギン酸等のナトリウム、カリウム、リチウム等のアルカリ金属塩、ポリエチレンオキサイド等の水溶性合成高分子、トロロアオイ、グルテン、ビロウドアオイ、ノリウツギ等の植物性粘質物からなる水溶性天然高分子があり、特に望ましい曳糸性増粘剤としてはポリアクリル酸ナトリウムがある。上記曳糸性増粘剤の添加量はその分子量によって左右され、通常スプレー時の該ホットメルト接着剤粉末分散液の粘度が50~1000 0cps/25℃になるように添加される。例えば粘度平均重合度が約38000 のポリアクリル酸ナトリウムの場合の添加量は0.01~1.0 重量%程度である。

更に上記ホットメルト接着剤粉末分散液には例えばポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体、塩化ビニル系樹脂、塩化ビニリデン系樹脂、スチレン系樹脂、酢酸ビニル系樹脂、フッ素系樹脂、熱可塑性アクリル系樹脂、熱可塑性ポリエステル、熱可塑性ポリアミド、熱可塑性ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、フェノール樹脂、レゾルシン樹脂、アルキルレゾルシン樹脂等の熱硬化性樹脂、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体、スチレン-ブタジエン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体等の合成樹脂エマルジョンやアクリルゴム、ブチルゴム、ケイ素ゴム、ウレタンゴム、フッ化物系ゴム、多硫化物系ゴム、グラフトゴム、ブタジエンゴム、イソpreneゴム、クロロpreneゴム、ポリイソブチレンゴム、ポリブテンゴム、イソブテン-イソpreneゴム、アクリレート-ブタジエンゴム、スチレン

ーブタジエンゴム、アクリロニトリルーブタジエンゴム、ピリジーンブタジエンゴム、スチレンーイソプレングム、アクリロニトリルークロロプレングム、スチレンークロロプレングム、スチレンーブタジエンスチレン共重合体、スチレンーイソプレンスチレン共重合体、スチレンー水素添加ポリオレフィンスチレン共重合体やブタジエンスチレンブロック共重合体、スチレンーゴム中間ブロックスチレン共重合体等のブロック共重合体等の合成ゴムやエラストマーの粉末やエマルジョンが添加されてもよい。更に必要ならば炭酸カルシウム、タルク、石膏、カーボンブラック、木粉、クルミ粉、ヤシガラ粉等の充填剤、増粘剤、顔料、染料、難燃剤、防災剤、防虫剤、防腐剤、老化防止剤、紫外線吸収剤、蛍光染料、界面活性剤、発泡剤、パラフィン、ワックス、シリコン等の軟化剤や撥水剤、あるいは離型剤や可塑剤等を添加してもよい。

上記ホットメルト接着剤粉末分散液を表皮材及び／又は基材の接着面にスプレー塗布する場合、該表皮材及び／又は基材を裏側から吸引することによって該ホットメルト接着剤粉末のスプレー時の衝撃による跳ね返りを防止し、該ホットメルト接着剤粉末を接着面に吸着することが望ましい。該ホットメルト接着剤粉末分散液のスプレー塗布量は通常固形分として5～100 g/m<sup>2</sup>である。上記曳糸性増粘剤を使用するとホットメルト接着剤粉末分散液は曳糸性のある構造粘性を有するようになるので、スプレーするとミスト状に分散されず、団塊状飛沫になって接着面に付着する。このような団塊状飛沫は接着面にけばがあってもけばの間に入り込まず、けば表面に付着する。したがって乾燥後は接着面表面にホットメルト接着剤粉末が効率良く付着した状態が得られる。

以上のように表皮材及び／又は基材の接着面にホットメルト接着剤粉末分散液をスプレー塗布した後、該表皮材及び／又は基材は加熱乾燥せしめられ、該ホットメルト接着剤粉末は接着面に融着する。該加熱乾燥の条件は通常使用されるホットメルト接着剤の融点以上の温度で100～200℃、5秒～5分程度である。

上記接着剤層によって該表皮材は該基材表面に貼着されるが、該接着剤が

溶液型あるいはエマルジョン型の場合には、接着面に形成された接着剤層が完全に乾燥する前に両者を貼り合わせる。また該接着剤層がホットメルト型の場合には、接着面を加熱して接着面に形成された接着剤層を軟化させた上で両者を貼り合わせる。

該基材の成形は該表皮材を貼り合わせる前、あるいは該表皮材を貼り合わせる時同時に、あるいは該表皮材を貼り合わせた後のいずれの時点で行われてもよい。

上記表皮材が通気性でありかつ基材に表皮材を貼り合わせてから成形する場合には、該基材に含まれている空気、あるいは該基材に含まれている合成樹脂から発生するガス（例えばフェノール樹脂の場合にはホルマリンガス、多価イソシアナートの場合には水又は炭酸ガス）は成形時に点状接着剤層を通過して表皮材から順調に外界へ排出されるので、製造される内装材にはパンプ現象が発生せず、また残存ガスによる臭気の問題も解消される。

本発明の内装材は、種々の用途に使用することができ、例えば、自動車のトランクルーム内装材やダッシュボード内装材等として好適である。該内装材において、特に表皮材と基材とを点状に散在している接着剤層によって接着した場合には、該接着剤層の剛性は内装材の成形形状や表面の凹凸形状に影響せず、したがって該内装材の成形形状や凹凸形状がシャープに成形される。また表皮材が通気性の場合には該接着剤層も通気性を有するので、得られる内装材は優れた防音性を有する。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の成形材を製造する工程の一例を示す説明図である。

第2図は、本発明の成形材を製造する工程の一例を示す説明図である。

第3図は、本発明の成形材を製造する工程の一例を示す説明図である。

第4図は、本発明の成形材料を製造する工程を示す説明図である。

第5図は、本発明の成形材料を成形する工程を示す説明図である。

第6図は、本発明の成形材料を成形して得られる成形物（自動車天井材）の斜視図である。

第7図は、表皮材に接着剤層を形成する工程を示す説明図である。

第8図は、表皮材の側断面図である。

第9図は、本発明の内装材を製造する工程を示す説明図である。

第10図は、本発明の一例による内装材（トランクルーム内装材）の側断面図である。

第11図は、表皮材の裏側斜視図である。

第12図は、表皮材を基材に圧着する工程を示す説明図である。

第13図は、本発明の一例による内装材（ダッシュボード表面材）の側断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、実施例により本発明を更に具体的に説明するが、本発明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

##### 〔実施例1〕

アルキルレゾルシノールとホルムアルデヒドとの初期縮合物の50重量%水溶液に0.5重量%のラウリルジメチルアミンオキシドを添加溶解し、第4図に示す起泡タンク21に充填する。該水溶液Sは該起泡タンク21内において攪拌機22によって攪拌されつゝ、空気吹込みノズル23から空気を吹込まれ起泡せしめられる。この場合の発泡倍率は8倍とする。

このようにして起泡せしめられた該水溶液Sはバルブ24を開いて排出管25から浸漬槽26に供給される。多孔質材料211はポリエステル繊維：竹繊維＝6：4の混合繊維からなるニードルパンチ不織布であって目付500 g/m<sup>2</sup>であり、該多孔質材料211はガイドロール27A、27B、27C、27Dを介して該浸漬槽26に浸漬され、該浸漬槽26内の該水溶液Sを付着せしめられ、それから絞りロール28によって押圧され該多孔質材料211に付着している該水溶液Sは該多孔質材料211の内部にまで浸透せしめられる。

該水溶液Sを含浸した多孔質材料211は次いで乾燥室29に導入され、該乾燥室29において80℃の熱風により10分間加熱乾燥され、該多孔質材料211内に含浸されているアルキルレゾルシノール-ホルムアルデヒド初期縮合物は

若干縮合してB状態とされる。該多孔質材料211の合成樹脂含浸量は15重量%である。

得られた成形材料211は加熱乾燥後、カッター210によって所定寸法に切断され、第5図に示すように表皮材212と共に上型215Aと下型215Bとからなる熱圧成形機215にセットされる。該表皮材212はポリプロピレンニードルパンチ不織布からなり、裏面にはポリエチレンフィルム213が裏打ちされている。

該成形材料211は該熱圧成形機215によってホットプレスされ、同時に該表皮材212をポリエチレンフィルム213を介して圧着せしめられる。該ホットプレス条件は、プレス温度180℃、プレス圧3 kg/cm<sup>2</sup>、プレス時間0.5分である。

このようにして第6図に示すような自動車の天井材214が製造される。

#### 〔実施例2〕

フェノールとアルキルレゾルシノールの1:2モル比混合物とホルムアルデヒドとの初期共縮合物の40重量%水溶液に1重量%のラウリル硫酸ナトリウム及び酸化チタン0.2重量%、ポリビニルアルコール0.5重量%、硬化剤としてヘキサメチレンテトラミン4重量%を添加混合し、第4図に示す起泡タンク21に充填し、攪拌機22によって攪拌しつつ、空気吹込みノズル23から空気を吹込み起泡せしめる。この場合の発泡倍率は3倍とする。

上記起泡物を多孔質材料であるポリウレタン発泡体シートに実施例1と同様に浸透させた後60℃の熱風で5分間加熱乾燥し、含浸されている上記初期共縮合物を若干縮合してB状態とする。該ポリウレタン発泡体シートに対する上記B状態の共縮合物の含浸量は15重量%であった。

得られた成形材料を200℃で1分間熱成形したところ剛性の良好な成形物が得られた。

#### 〔実施例3〕

フェノール-アルキルレゾルシノール-ホルムアルデヒドとの初期共縮合物の65重量%水溶液に0.5重量%のラウリルジメチルアミノキシドを添加溶解し、第4図に示す起泡タンク21に充填する。該水溶液Sは該起泡タンク

21内において攪拌機22によって攪拌されつゝ、空気吹込みノズル23から空気を吹込まれ起泡せしめられる。この場合の発泡倍率は6倍とする。

上記起泡物を実施例1と同様の多孔質材料211に実施例1と同様に浸透させた後80℃の熱風で5分間加熱乾燥し、含浸されている上記初期共縮合物を若干縮合してB状態とする。該多孔質材料211に対する上記B状態の共縮合物の含浸量は20重量%である。

得られた成形材料211は、加熱乾燥後カッター210によって所定寸法に切断され、次いでプレス温度を200℃とする以外、実施例1と同様にしてホットプレスされる。

このようにして第6図に示すような自動車の天井材214が製造される。

#### 〔製造例1〕

温度計、冷却管及び攪拌機を備えた反応容器中に、フェノール1モル(94g)、37%ホルマリン2モル(162g)、水酸化ナトリウム0.1モル(4g)及び亜硫酸ナトリウム0.3モル(37.8g)を投入し、攪拌しながら70℃で5時間反応させた。その後、トリエタノールアミン0.02gを加え、更に90℃で0.5時間反応させ、初期縮合物Aを得た。

#### 〔製造例2〕

トリエタノールアミンを0.1gとする以外、製造例1と同様にして初期縮合物Bを製造した。

#### 〔製造例3〕

トリエタノールアミンを0.5gとする以外、製造例1と同様にして初期縮合物Cを製造した。

#### 〔比較製造例1〕

製造例1と同様の反応容器中に、フェノール1モル(94g)、37%ホルマリン2モル(162g)及び水酸化ナトリウム0.1モル(4g)を投入し、攪拌しながら70℃で5時間反応させ、次いで90℃で0.5時間反応させ、初期縮合物Dを得た。

#### 〔試験例1〕

製造例1～3及び比較製造例1で得られた初期縮合物A、B、C、Dにつ



いて、放置安定性、水希釈性及び硬化率を測定した。

放置安定性については、各初期縮合物の溶液を30℃の熱風循環恒温室に放置し、粘度の経時変化を測定した。

水希釈性については、各初期縮合物の溶液を30℃の熱風循環恒温室に0～60日間放置したものを5 g採取し、何倍量の水の添加で白濁が発生するかを測定した。

硬化率については、まず各初期縮合物の溶液を製造直後に濾紙に含浸させて重量（塗布量）を測定しておき、50, 80, 120, 150, 200℃の各温度で1分間熱圧成型した。次いで、95～100℃の温水中で30分煮沸し、30℃で24時間乾燥させた後、重量（塗布量）を測定した。硬化率は、以下の式で示される。

$$\text{硬化率} = (\text{煮沸後の塗布量} / \text{最初の塗布量}) \times 100 (\%)$$

各測定結果を表1に示す。

<表1>

		初期縮合物			
		A	B	C	D
放置安定性 (cps/30℃)	直後	440	455	450	400
	5日後	445	450	450	480
	10日後	445	460	460	1010
	20日後	450	470	480	6800
	30日後	460	475	490	35000
	60日後	490	500	520	ゲル化
水希釈性 (倍)	直後	∞	∞	∞	∞
	5日後	∞	∞	∞	∞
	10日後	∞	∞	∞	∞
	20日後	∞	∞	∞	20
	30日後	∞	∞	∞	2
	60日後	∞	∞	∞	—
硬化率 (%)	50℃	0	0	2	35
	80℃	5	10	90	40
	120℃	15	85	95	70
	150℃	90	95	100	85
	200℃	100	100	100	100

表 1 に示すように、製造例 1 ～ 3 による初期縮合物は、放置安定性及び水希釈性に優れていること、また、硬化性がシャープであり、硬化温度もアミンの添加量で調節できること、更にはアミンの添加量によっては、比較製造例 1 の初期縮合物よりも低温で硬化することが分かる。

〔実施例 4〕

製造例 1 と同様の反応容器中に、フェノール 1 モル (94 g)、37%ホルマリン 1.5 モル (121.5 g) 及び水酸化ナトリウム 0.1 モル (4 g) を投入し、攪拌しながら 60℃ で 2 時間反応させた。その後、ロンガリット 0.05 モル (7.7 g)、アルキルレゾルシノール 0.1 モル (148 g) 及びエチルアミン 3 g を加え、更に 95℃ で 3 時間反応させ、初期縮合物 E を得た。

得られた初期縮合物 E を、ガラスウールマット (目付量: 1000g/m<sup>2</sup>) に対して固形分として 20 重量% の割合になるように含浸させた後、80℃ で 10 分間加熱乾燥し、該初期縮合物 E を若干縮合して B 状態とした。5 ～ 60 日経過後、該マットを厚さ 5 cm、比重 0.02 になるように 150 ～ 200 °C で 3 分間熱圧成型し、その状態を調べた。結果を表 2 に示す。

〔比較例 1〕

製造例 1 と同様の反応容器中に、フェノール 1 モル (94 g)、37%ホルマリン 1.5 モル (121.5 g) 及び水酸化ナトリウム 0.1 モル (4 g) を投入し、攪拌しながら 60℃ で 2 時間反応させ、次いで 95℃ で 3 時間反応させ、初期縮合物 F を得た。

得られた初期縮合物 F を実施例 4 と同様にしてガラスウールマットに含浸させた後、熱圧成型し、その状態を調べた。結果を表 2 に示す。

&lt; 表 2 &gt;

		成型状態	
プレス条件	経過時間	E	F
150℃× 3分	5日後	○	××
	10日後	○	××
	20日後	○	××
	40日後	○	×
	60日後	○	×
180℃× 3分	5日後	○	○
	10日後	○	○
	20日後	○	△
	40日後	○	×
	60日後	○	×
200℃× 3分	5日後	○	○
	10日後	○	△
	20日後	○	△
	40日後	○	×
	60日後	○	×

○：成型は全体に良好で、十分に硬化している。

△：一部成型不良部分が見られる。

×：硬化はするが、成型不良を生じ、成型後の厚みが5 cm以上となる。

××：硬化せず、成型できない。

表2に示すように、実施例4における初期縮合物は放置安定性に優れており、長期間放置しても良好な硬化性を示すが、比較例1における初期縮合物は時間の経過により硬化が少しずつ進行するため、熱圧成型した際にガラスウールの接着性が悪く、成型不良が発生することが分かる。

#### 〔実施例5〕

製造例1と同様の反応容器中であらかじめフェノール1モル(94 g)、37%ホルマリン2モル(162 g)、水酸化ナトリウム0.05モル(2 g)及びメタ重亜硫酸ソーダ0.2モル(38 g)を75℃で6時間反応させたもの90 gと、フェノール1モル(94 g)と、37%ホルマリン2モル(162 g)と、水酸化ナトリウム0.01モル(0.4 g)との混合物に、25%アンモニア水0.03モル(

2 g) を加え、70℃で10時間反応させた。その後、5-メチルレゾルシノール0.06モル(7.5 g)を加え、更に90℃で1時間反応させ、初期縮合物Gを得た。

得られた初期縮合物Gを、ポリエステル100%からなる不織布シート(目付量: 100 g/m<sup>2</sup>)に対して固形分として15重量%の割合になるように含浸させ、90℃で3分間加熱乾燥し、該初期縮合物Gを若干縮合してB状態とした。このシートを、厚さ10mm、比重0.01になるように120℃で1分間熱圧成型したところ、成型性が良好な成型物が得られた。

#### 〔実施例6〕

実施例5で得られた初期縮合物G 100重量部に対し、ヘキサメチレンテトラミン2重量部、イソブタンをマイクロカプセル化した熱可塑性膨張性発泡剤5重量部、パラフィンワックス2重量部及び三酸化アンチモン8重量部を加え、攪拌して均一に混合した。得られた混合物を、繊維シート(麻/ケナフ/再生フェルト=1/1/1)に対して固形分として20重量%の付着量になるように塗布した後、70℃で5分間加熱乾燥し、該初期縮合物を若干縮合してB状態とした。得られた繊維シートと、酢酸ビニル-エチレン共重合フィルム(融点: 85℃)と、表皮材としてのポリエステルフィルムとを重ね、140℃で1分間熱圧成型したところ、剛性の高い成型物が得られた。

#### 〔実施例7〕

製造例3で得られた初期縮合物Cを、ポリエステル繊維からなる再生フェルト(目付量: 1500g/m<sup>2</sup>)のシートに対して固形分として20重量%の割合になるようにスプレー塗布し、60℃で5分間加熱乾燥し、該初期縮合物Cを若干縮合してB状態とした。このシートを、厚さ2mm、比重0.1になるように80℃で6分間熱圧成型したところ、剛性の高い成型物が得られた。

#### 〔実施例8〕

フェノール1モル、37%ホルマリン2.5モル、水酸化ナトリウム0.1モル及び亜硫酸ナトリウム0.1モルを100℃で2時間反応させて、スルホメチル化一価フェノール・アルデヒド初期縮合物Hを得た。

該初期縮合物Hを、ポリエステル80重量%及びポリアミド20重量%からな

る不織布シート（目付：100 g/m<sup>2</sup>）に対し15重量％になるように含浸させ、100 °Cで10分間加熱して該初期縮合物Hを若干縮合してB状態とした。

このようにして得られたシート状成形材料をメラミン樹脂発泡体（発泡倍率：5倍）に重ね、180 °Cで3分間熱圧成形したところ、シート状成形材料（硬化シート）の接着性が良好で、成形性に優れるとともに、剛性の大きい成形材が得られた。

#### 〔実施例9〕

実施例8と同様にして得たスルホメチル化一価フェノール・アルデヒド初期縮合物Hに5-メチルレゾルシン0.3モルを加え、更に100 °Cで0.5時間反応させて、スルホメチル化一価フェノール-多価フェノール・アルデヒド初期縮合物Iを得た。

該初期縮合物Iを、アクリル繊維90重量％及び炭素繊維10重量％からなる織物シート（目付：50g/m<sup>2</sup>）に対し30重量％になるように含浸させ、100 °Cで10分間加熱して該初期縮合物Iを若干縮合してB状態とした。

一方、木片100重量部に対し、レゾール型フェノール樹脂20重量部及びマイクロカプセル型発泡剤7重量部を配合して、木質発泡体を製造した。

得られた木質発泡体の表面に上記シート状成形材料を重ね、200 °Cで1分間熱圧成形したところ、シート状成形材料（硬化シート）の接着性が良好で、成形性に優れるとともに、剛性の大きい成形材が得られた。

#### 〔比較例2〕

初期縮合物を含浸させない以外、実施例9と同様にして織物シートを木質発泡体の表面に重ね、成形したところ、織物シートの接着性が悪く、一部が剥離した。また、織物シート部の成形性が悪く、所望の形状に成形することができなかった。

#### 〔実施例10〕

フェノール1モル、37%ホルマリン2モル及び水酸化ナトリウム0.1モルを100 °Cで1時間反応させた後、亜硫酸ナトリウム0.2モルを加え、更に100 °Cで40分間反応させて、スルホメチル化一価フェノール・アルデヒド初期縮合物Jを得た。

一方、5-メチルレゾルシン2.5 モル、37%ホルマリン1 モル及び水酸化ナトリウム0.15モルを60℃で8時間反応させ、多価フェノール・アルデヒド初期縮合物Kを得た。

上記初期縮合物Jと初期縮合物Kとを混合し、70℃で2時間反応させ、スルホメチル化一価フェノール-多価フェノール初期共縮合物Lを得た。

得られた初期縮合物L 100 重量部に、50%アクリル酸エステルエマルジョン5 重量部、20%フッ素系撥油剤0.02重量部及び30%有機リン・窒素系難燃剤5 重量部を添加し、更に硬化剤としてパラホルムアルデヒド10重量部を添加混合したものを、ガラス繊維70重量%、ポリエステル繊維20重量%及びケナフ繊維10重量%からなる不織布シート（目付：100 g/m<sup>2</sup>）に対し25重量%になるように含浸させ、80℃で5分間加熱して該初期縮合物Lを若干縮合してB状態とした。その後150℃で1分間熱圧成形し、所定の形状に硬化成形した。

このようにして硬化成形した硬化シートを、成型型の型面にセットするとともに、樹脂注入口から該成型型内に有機発泡ガス含有フェノール樹脂液を注入し、200℃で4分間成形したところ、硬化シートの接着性が良好で、成形性に優れるとともに、剛性の大きい成形材が得られた。

#### 〔実施例11〕

次の処方でホットメルト接着剤粉末分散液を調合した。

エチレン-酢酸ビニル共重合体（EVA）粉末*	35 重量%
水	65 “

\*1：融点90℃，200メッシュパス

表皮材としては、ポリエステル繊維からなるニードルパンチ不織布を用いた。

第7図に示すように該表皮材33はロール315 から引出され、ネットやフェルトからなる通気性ベルトコンベア316 上に導入され、該ベルトコンベア316 裏面に当接されている吸引ボックス317 によって裏側から真空吸引される。該吸引ボックス317 にはバルブ319 付きの真空経路318 が連絡している。この状態で該表皮材33表面には上方からスプレー装置320 によって上記ホッ

トメルト接着剤粉末分散液34Bがスプレーされた。該スプレー装置320には該分散液34Bが攪拌槽321において攪拌機322によって攪拌されつゝポンプ323によって送り込まれている。

上記ホットメルト接着剤粉末分散液34Bは上記スプレーによって上記表皮材33表面に固形分として15g/m<sup>2</sup>の量で塗布されるが、上述したようにホットメルト接着剤粉末分散液のスプレー中、該表皮材33は裏側から吸引ボックス317によって吸引されているので、該ホットメルト接着剤粉末は該表皮材33接着面でスプレー衝撃によって跳ね返り飛散することなく吸着される。このようにして該分散液をスプレー塗布した後、該表皮材33を乾燥室324に導入し、150℃、2分間の加熱乾燥によって乾燥した。このようにして第8図に示すようにポリエステル繊維ニードルパンチ不織布である表皮材33上にEVA粉末が固着され、接着面に点状に散在されている接着剤層34Aが形成され、該表皮材33はカッター325によって所定寸法にカットされた。

一方、再生繊維を構成繊維とする不織布からなる繊維シートにフェノール樹脂の初期縮合物を30重量%含浸した後、70℃で加熱乾燥せしめ、該初期縮合物を若干縮合してB状態とし、基材32とする。

第9図に示すように、得られた基材32の上に上記表皮材33を重ねて下型327と上型328とからなるホットプレス装置326にセットし、ホットプレスを行って該基材32表面に凹凸を形成すると同時に該表皮材33の接着剤層34Aを軟化させ、該表皮材33を該接着剤層34Aを介して該基材32に接着する。このようにして第10図に示されるようにシャープな凹凸が形成された自動車のトランクルームの内装材31が製造される。

#### 〔実施例12〕

第11図に示すようにポリ塩化ビニルシートである表皮材313の接着面にポリエチレン溶融物をシルクスクリーン印刷することによって、斑点状に散在した接着剤層314Aを形成する。

一方、再生繊維に30重量%のフェノール樹脂を含浸させ、100℃で7分間加熱乾燥し、該フェノール樹脂を若干縮合してB状態とする。得られたシートを250℃の温度で加熱プレス成形して第12図に示すようなダッシュボー

ドの基材312 とし、該基材312 を下型330 と上型331 とからなる表皮材圧着型329 にセットする。

上記表皮材313 の接着剤層314 Aを加熱軟化させた状態で、該表皮材313 を該基材312 の上に重ね合わせ、該表皮材圧着型329 によって表皮材313 を該基材312 表面に圧着する。

このようにして第13図に示すようにシャープな形状に成形された自動車のダッシュボードの表面材311 が製造される。

上記実施例11, 12では表皮材側に接着剤層を形成したが、本発明では基材側に接着剤層を形成してもよい。

#### 産業上の利用可能性

本発明の成形材料及び成形材は、ドアトリム、ダッシュボード、天井材、床材、インシュレーターフード、ダッシュインナー、ダッシュアウター、エンジンアンダーカバー、トランクサイドトリム等の車輛用内装材；壁材等の建築材；ベッド等の芯材；椅子、ソファ、シート等のクッション材；各種パッド等に有用である。



## 請 求 の 範 囲

1. B状態の熱硬化性合成樹脂を含浸した多孔質材料からなることを特徴とする成形材料。
2. 該熱硬化性合成樹脂は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とのB状態の縮合物である請求項1記載の成形材料。
3. 該縮合物は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とをアンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させたものである請求項2記載の成形材料。
4. 該縮合物の一部又は全部は、スルホメチル化及び／又はスルフィメチル化されている請求項2又は3記載の成形材料。
5. 該成形材料はシート状である請求項1乃至4いずれか記載の成形材料。
6. 基材と、該基材の表面の一部又は全部に貼着されている請求項5記載のシート状の成形材料中の熱硬化性合成樹脂を硬化した硬化シートとからなり、所定形状に成形されていることを特徴とする成形材。
7. 請求項1乃至4いずれか記載の成形材料中の熱硬化性合成樹脂を硬化してなる基材と、該基材の表面に貼着されている表皮材とからなることを特徴とする内装材。
8. 該基材と該表皮材とは、接着面に点状に散在されている接着剤層によって接着されている請求項7記載の内装材。
9. 熱硬化性合成樹脂の初期縮合物を多孔質材料に含浸せしめ、該多孔質材料を加熱乾燥すると共に該初期縮合物を若干縮合せしめてB状態とすることを特徴とする成形材料の製造方法。
10. 該熱硬化性合成樹脂の初期縮合物を該多孔質材料に含浸せしめる際に、該初期縮合物を起泡及び／又は発泡せしめて該多孔性材料に接触させ、次いで該多孔性材料を押圧することによって、該起泡及び／又は発泡せしめた初期縮合物を該多孔性材料の内部まで浸透させる請求項9記載の成形材料の製造方法。
11. 該熱硬化性合成樹脂の初期縮合物は、フェノール系化合物とアルデヒ

ド及び／又はアルデヒド供与体とを縮合させたフェノール系樹脂の初期縮合物である請求項 9 又は 10 記載の成形材料の製造方法。

12. 該フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とは、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合される請求項 11 記載の成形材料の製造方法。

13. 該フェノール系樹脂の初期縮合物の一部又は全部は、任意の段階でスルホメチル化剤及び／又はスルフィメチル化剤を添加することにより、スルホメチル化及び／又はスルフィメチル化されている請求項 11 又は 12 記載の成形材料の製造方法。

[1999年6月29日(29.06.99)国際事務局受理：出願当初の請求の範囲

2, 4, 11及び13は取り下げられた；出願当初の請求の範囲1, 3, 5, 6, 7, 9, 10及び12は補正された；他の請求の範囲は変更なし。(2頁)]

1. (補正後) フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体との縮合物であるフェノール系樹脂を含浸した多孔質材料からなる成形材料であって、該フェノール系樹脂の一部又は全部はスルホメチル化及び／又はスルフィメチル化されており、かつ該フェノール系樹脂はB状態とされていることを特徴とする成形材料。
2. (削除)
3. (補正後) 該フェノール系樹脂は、フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とをアンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合させたものである請求項1記載の成形材料。
4. (削除)
5. (補正後) 該成形材料はシート状である請求項1又は3記載の成形材料。
6. (補正後) 基材と、該基材の表面の一部又は全部に貼着されている請求項5記載のシート状の成形材料中のフェノール系樹脂を硬化した硬化シートとからなり、所定形状に成形されていることを特徴とする成形材。
7. (補正後) 請求項1又は3記載の成形材料中のフェノール系樹脂を硬化してなる基材と、該基材の表面に貼着されている表皮材とからなることを特徴とする内装材。
8. 該基材と該表皮材とは、接着面に点状に散在されている接着剤層によって接着されている請求項7記載の内装材。
9. (補正後) フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体との初期縮合物であって、任意の段階でスルホメチル化剤及び／又はスルフィメチル化剤を添加することにより、該初期縮合物の一部又は全部をスルホメチル化及び／又はスルフィメチル化したものを、多孔質材料に含浸せしめ、該多孔質材料を加熱乾燥すると共に該初期縮合物を若干縮合せしめてB状態とすることを特徴とする成形材料の製造方法。
10. (補正後) 該初期縮合物を該多孔質材料に含浸せしめる際に、該初期縮合物を起泡及び／又は発泡せしめて該多孔性材料に接触させ、次いで該多孔性材料

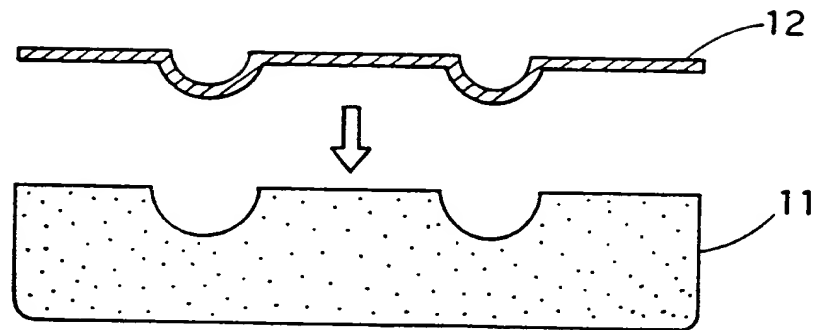
を押圧することによって、該起泡及び／又は発泡せしめた初期縮合物を該多孔性材料の内部まで浸透させる請求項 9 記載の成形材料の製造方法。

1 1. (削除)

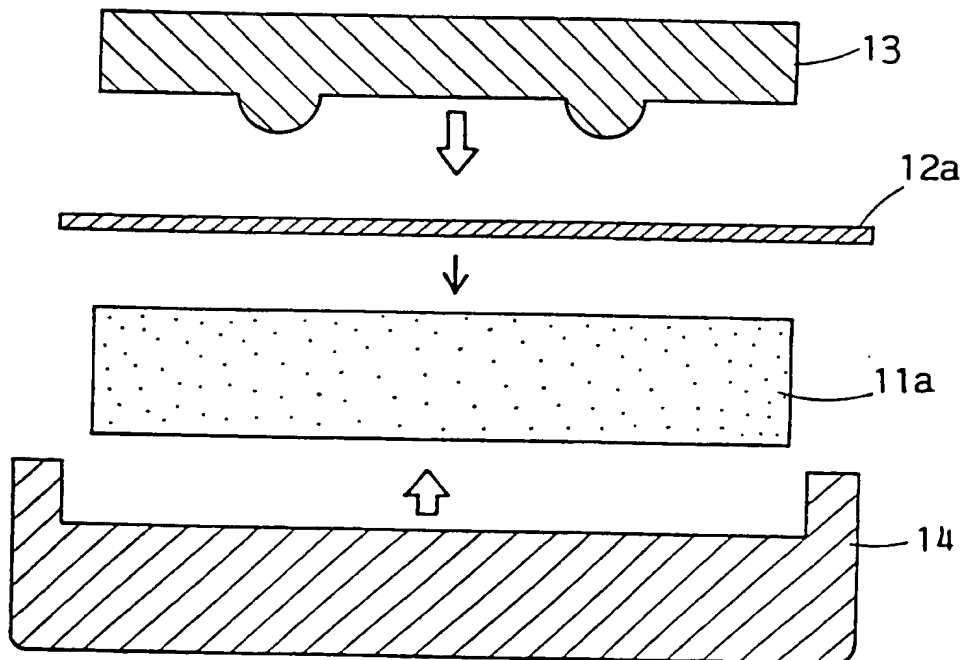
1 2. (補正後) 該フェノール系化合物とアルデヒド及び／又はアルデヒド供与体とは、アンモニア及び／又はアミンの存在下で縮合される請求項 9 又は 1 0 記載の成形材料の製造方法。

1 3. (削除)

第 1 図

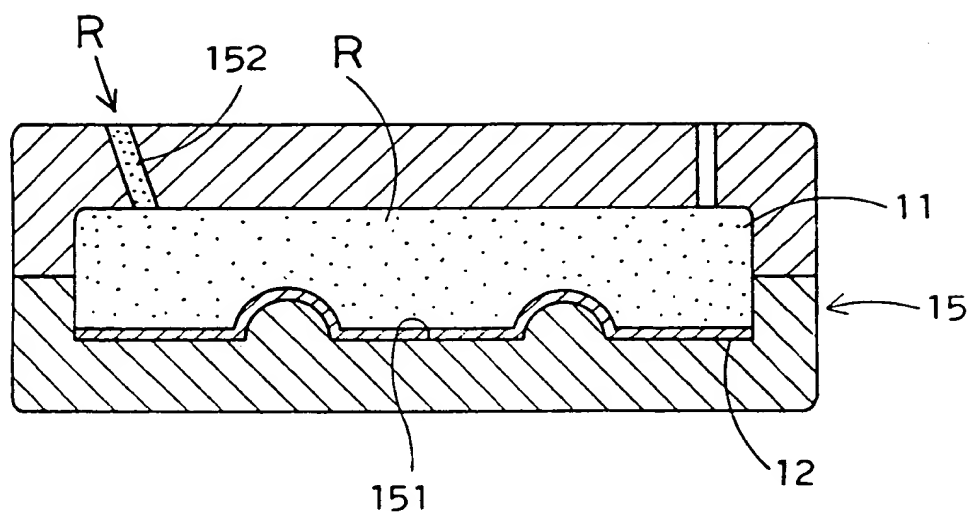


第 2 図



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

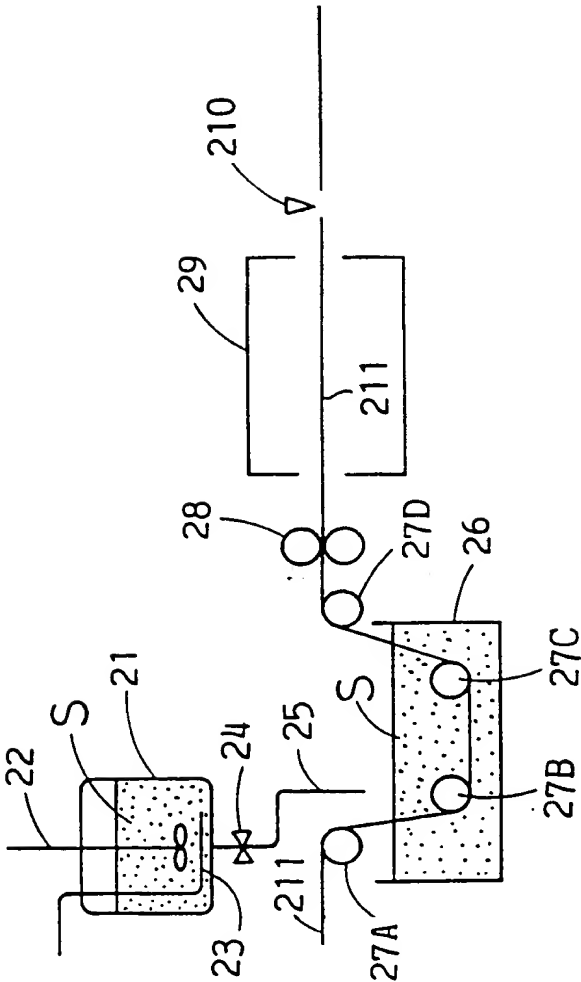
第 3 図



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

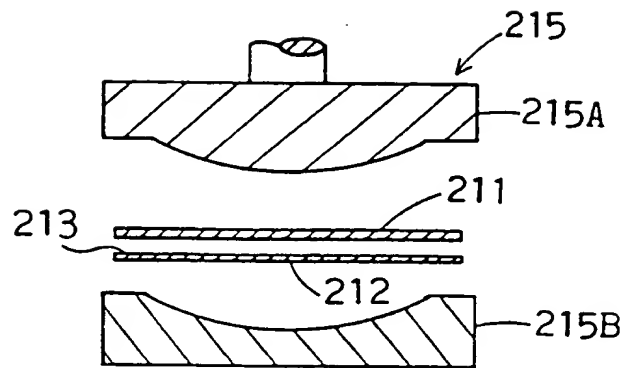


第4図

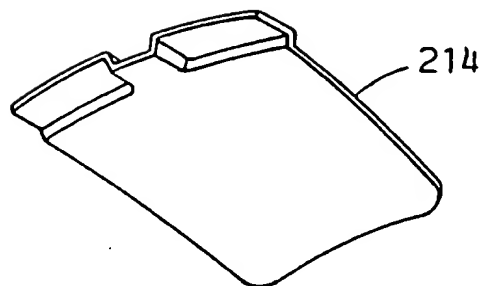


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

第 5 図

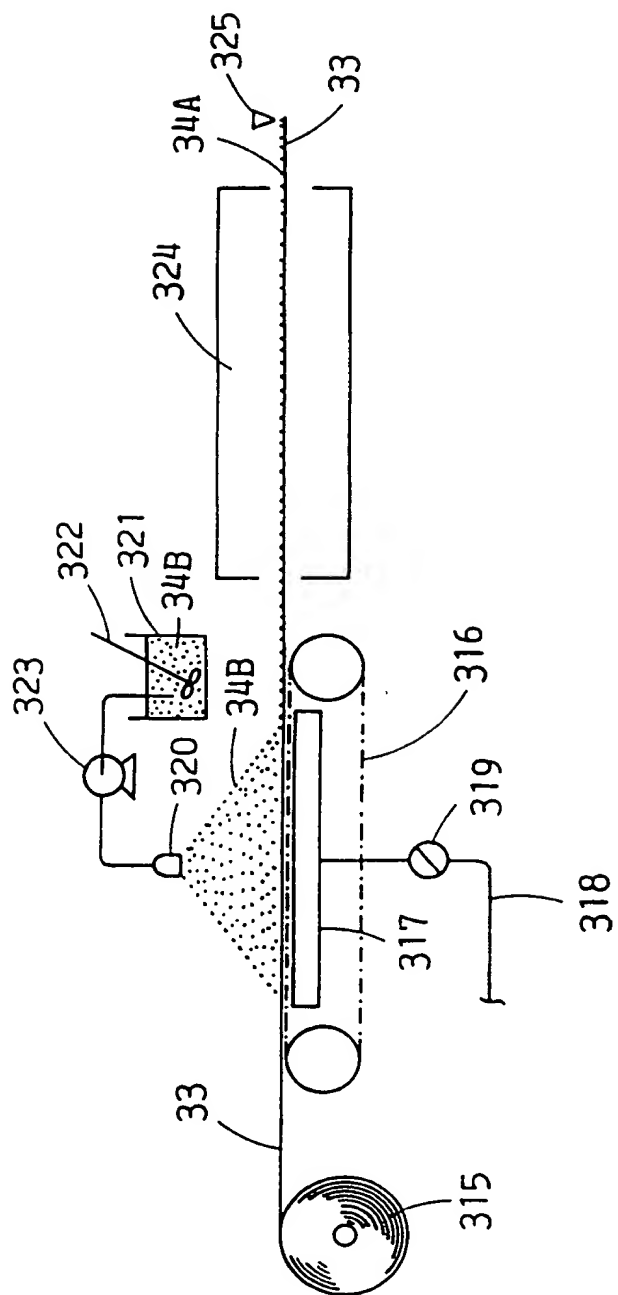


第 6 図



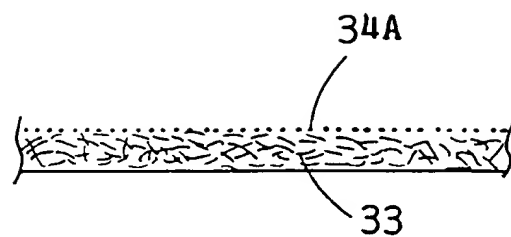
**THIS PAGE BLANK (USP)**

第7図

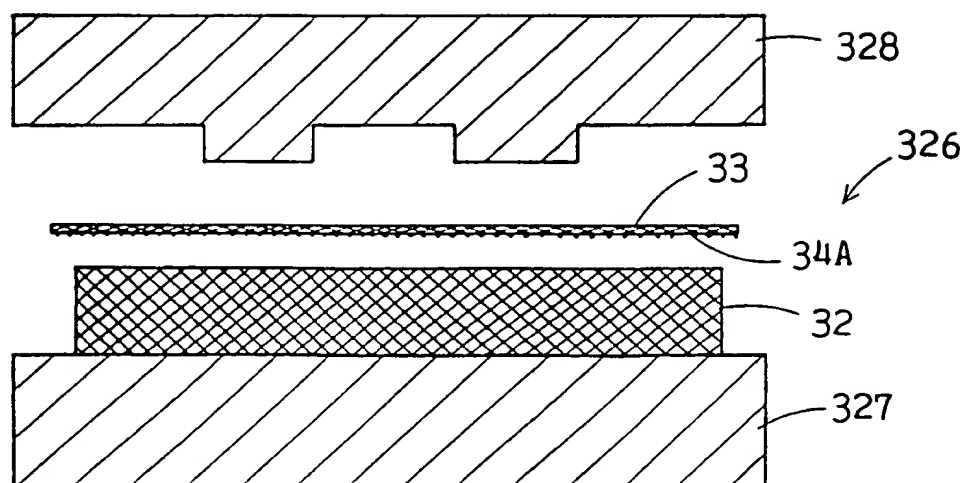


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

第 8 図



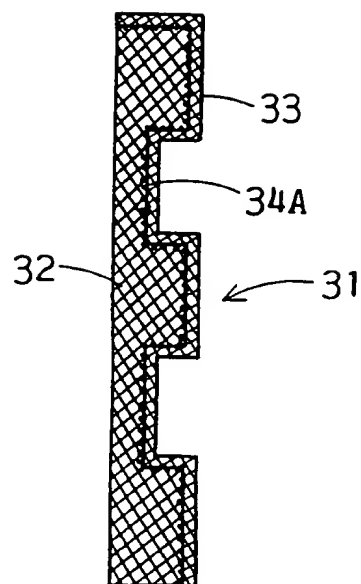
第 9 図



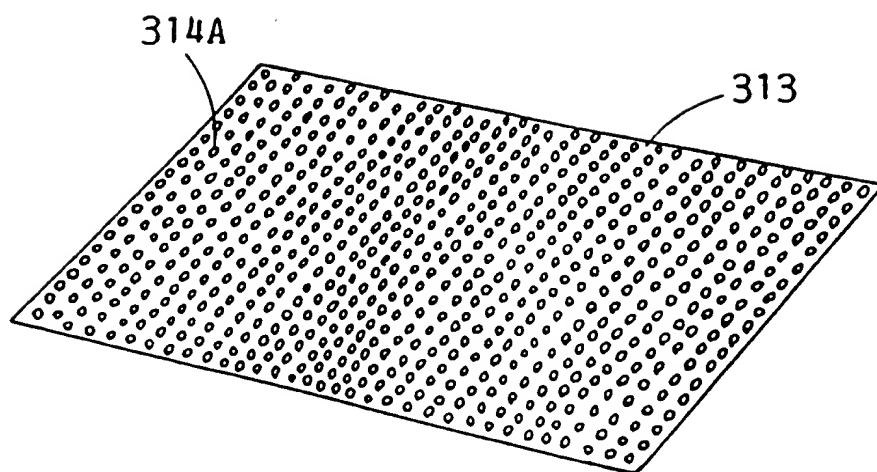
**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



第 1 0 図

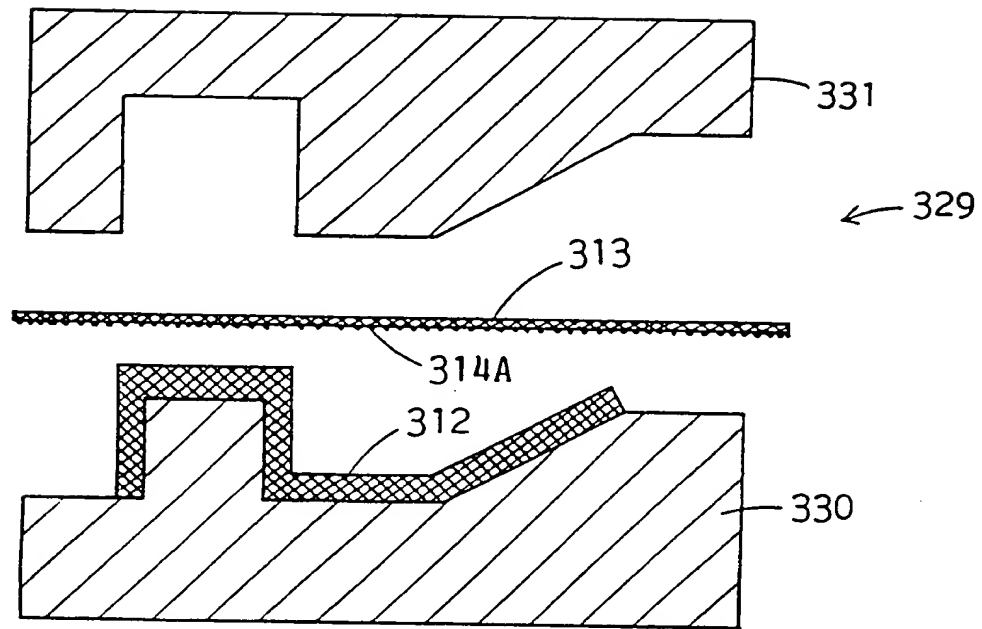


第 1 1 図

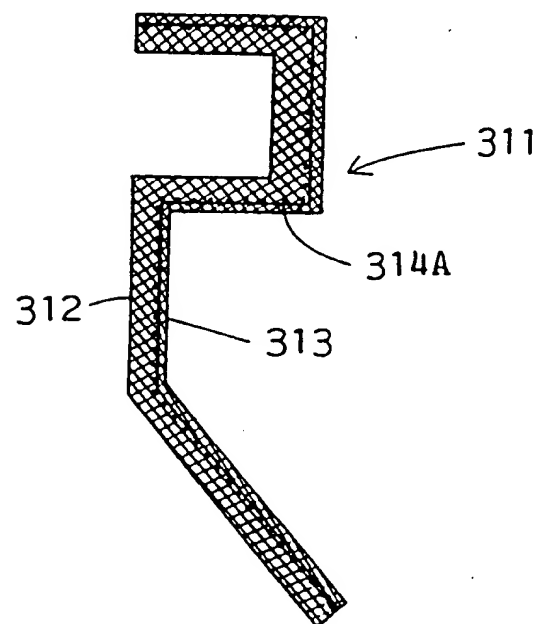


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

第 1 2 図



第 1 3 図



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/00765

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>6</sup> C08J5/24, B32B5/28, B29B5/10 // B29K105:06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>6</sup> C08J5/24, 9/04, C08G8/10, B32B5/28, B29B5/10, B29K105:06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI (DIALOG)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 5-286069, A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 2 November, 1993 (02. 11. 93) (Family: none)	1-2, 5, 9-11
Y		3-4, 6-8, 12-13
X	JP, 4-16337, A (Mitsui Petrochemical Industries, Ltd.), 21 January, 1992 (21. 01. 92) (Family: none)	1, 5, 9-10
Y		6-8
A		2-4, 11-13
Y	Mioji Kaminaka, "Phenal Jushi" (1971), Plastic Gijutsu Zensho, No. 15, K.K. Kogyo Chosakai, pages 16, 17	3-8, 12-13
A		1-2, 9-11
E, Y	EP, 10-279720, A (Nagoya Oilchemical Co., Ltd.), 20 October, 1998 (20. 10. 98) (Family: none)	1-13
X	JP, 10-51095, A (Hokuriku Electric Industry Co., Ltd.), 20 February, 1998 (20. 02. 98) & EP, 809424, A1	1-2, 5-9, 11
Y		3-4, 10, 12-13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
23 April, 1999 (23. 04. 99)Date of mailing of the international search report  
11 May, 1999 (11. 05. 99)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/00765

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-29260, A (Shin-Kobe Electric Machinery Co., Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	3 February, 1998 (03. 02. 98) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-199829, A (Hokuriku Electric Industry Co., Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	31 July, 1997 (31. 07. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-174546, A (Matsushita Electric Works, Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	8 July, 1997 (08. 07. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-59400, A (Matsushita Electric Works, Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	4 March, 1997 (04. 03. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-3745, A (Toray Industries, Inc.),	1-2, 5-9, 11
Y	7 January, 1997 (07. 01. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 7-142633, A (Hitachi, Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	2 June, 1995 (02. 06. 95) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 6-143448, A (Shinko Kagaku Kogyo K.K.),	1-2, 5-9, 11
Y	24 May, 1994 (24. 05. 94) (Family: none)	3-4, 10, 12-13

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>8</sup> C08J5/24, B32B5/28, B29B5/10 // B29K105:06

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>8</sup> C08J5/24, 9/04, C08G8/10, B32B5/28, B29B5/10, B29K105:06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
WPI (DIALOG)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 5-286069, A (松下電工株式会社), 2. 11月. 1993 (02. 11. 93) (ファミリーなし)	1-2, 5, 9-11 3-4, 6- 8, 12- 13
X Y A	JP, 4-16337, A (三井石油化学工業株式会社), 21. 1月. 1992 (21. 01. 92) (ファミリーなし)	1, 5, 9- 10 6-8 2-4, 11 -13

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23. 04. 99

国際調査報告の発送日

11.05.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

村上 騎見高 印

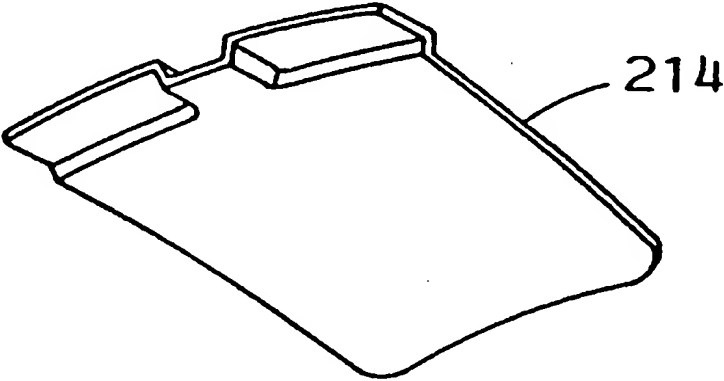
4 J

8827

電話番号 03-3581-1101 内線 6833

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	上中三男二編著、プラスチック技術全書第15巻「フェノール樹脂」(1971)第16～17頁、株式会社工業調査会	3-8, 12-13 1-2, 9-11
E, Y	J P, 10-279720, A (名古屋油化株式会社), 20. 10月. 1998 (20. 10. 98) (ファミリーなし)	1-13
X Y	J P, 10-51095, A (北陸電気工業株式会社), 20. 2月. 1998 (20. 02. 98) & E P, 809424, A1	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13
X Y	J P, 10-29260, A (新神戸電機株式会社), 3. 2月. 1998 (03. 02. 98) (ファミリーなし)	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13
X Y	J P, 9-199829, A (北陸電気工業株式会社), 31. 7月. 1997 (31. 07. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13
X Y	J P, 9-174546, A (松下電工株式会社), 8. 7月. 1997 (08. 07. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13
X Y	J P, 9-59400, A (松下電工株式会社), 4. 3月. 1997 (04. 03. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13
X Y	J P, 9-3745, A (東レ株式会社), 7. 1月. 1997 (07. 01. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13
X Y	J P, 7-142633, A (株式会社日立製作所), 2. 6月. 1995 (02. 06. 95) (ファミリーなし)	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13
X Y	J P, 6-143448, A (新興化学工業株式会社), 24. 5月. 1994 (24. 05. 94) (ファミリーなし)	1-2, 5-9, 11 3-4, 10, 12-13



<p>(51) 国際特許分類6 C08J 5/24, B32B 5/28, B29B 5/10 // B29K 105:06</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO99/42516</p> <p>(43) 国際公開日 1999年8月26日 (26.08.99)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP99/00765</p> <p>(22) 国際出願日 1999年2月19日 (19.02.99)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平10/56090 1998年2月20日 (20.02.98) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 名古屋油化株式会社 (NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP] 〒476-0001 愛知県東海市南柴田町ホの割213番地の5 Aichi, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および</p> <p>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてののみ) 堀木清之助 (HORIKI, Seinosuke) [JP/JP] 小川正則 (OGAWA, Masanori) [JP/JP] 紀岡宣彦 (KIOKA, Norihiko) [JP/JP] 梶田武彦 (KAJITA, Takehiko) [JP/JP] 伊藤邦矩 (ITO, Kuninori) [JP/JP] 〒476-0001 愛知県東海市南柴田町ホの割213番地の5 名古屋油化株式会社内 Aichi, (JP)</p>		<p>(74) 代理人 弁理士 宇佐見忠男 (USAMI, Tadao) 〒467-0035 愛知県名古屋瑞穂区弥富町月見ヶ丘32番地 102号 Aichi, (JP)</p> <p>(81) 指定国 CA, JP, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書 補正書</p>
<p>(54) Title: <u>MOLDING MATERIAL, INNER MATERIAL USING THE SAME, AND METHOD FOR PRODUCING THE SAME</u></p>		
<p>(54) 発明の名称 成形材料、それを用いた内装材及び成形材料の製造方法</p>		
		
<p>(57) Abstract</p> <p>A molding material which not only can be stored for a long period and has good moldability, but also can be used for producing a molded product having excellent thermal resistance is intended. For such purpose, there is provided a molding material comprising a porous material impregnated with a thermosetting synthetic resin being in B state, and a method for producing a molding material characterized in that a porous material is impregnated with an early stage condensate of a thermosetting synthetic resin, and the resultant mixture is heated, to thereby dry the porous material and at the same time render the condensate to be in B state by somewhat enhancing the degree of condensation.</p>		

本発明の課題は、本発明の課題は、長期間保管でき、良好な成形性を有するとともに、耐熱性に優れた成形物を得ることのできる成形材料を提供することである。

本発明は、上記課題を解決するために、B状態の熱硬化性合成樹脂を含浸した多孔質材料からなることを特徴とする成形材料を提供するものであり、更には、熱硬化性合成樹脂の初期縮合物を多孔質材料に含浸せしめ、該多孔質材料を加熱乾燥すると共に該初期縮合物を若干縮合せしめてB状態とすることを特徴とする成形材料の製造方法を提供するものである。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール
AL	アルバニア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SI	スロヴェニア
AM	アルメニア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロヴァキア
AT	オーストリア	GA	ガボン	LS	レソト	SL	シエラ・レオネ
AU	オーストラリア	GB	英国	LT	リトアニア	SN	セネガル
AZ	アゼルバイジャン	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	TD	チャード
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BE	ベルギー	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BF	ブルキナ・ファソ	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BG	ブルガリア	GW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TR	トルコ
BJ	ベナン	GR	ギリシャ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
BR	ブラジル	HR	クロアチア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
BY	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CA	カナダ	ID	インドネシア	MW	マラウイ	US	米国
CF	中央アフリカ	IE	アイルランド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CG	コンゴ	IL	イスラエル	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CH	スイス	IN	インド	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CI	コートジボワール	IS	アイスランド	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
CM	カメルーン	IT	イタリア	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CN	中国	JP	日本	PL	ポーランド		
CU	キューバ	KE	ケニア	PT	ポルトガル		
CY	キプロス	KG	キルギスタン	RO	ルーマニア		
CZ	チェコ	KP	北朝鮮	RU	ロシア		
DE	ドイツ	KR	韓国	SD	スーダン		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	SE	スウェーデン		
EE	エストニア	LC	セントルシア				

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/00765

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>6</sup> C08J5/24, B32B5/28, B29B5/10 // B29K105:06		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>6</sup> C08J5/24, 9/04, C08G8/10, B32B5/28, B29B5/10, B29K105:06		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) WPI (DIALOG)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP, 5-286069, A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 2 November, 1993 (02. 11. 93) (Family: none)	1-2, 5, 9-11  3-4, 6-8, 12-13
X Y A	JP, 4-16337, A (Mitsui Petrochemical Industries, Ltd.), 21 January, 1992 (21. 01. 92) (Family: none)	1, 5, 9-10  6-8 2-4, 11-13
Y A	Mioji Kaminaka, "Phenal Jushi" (1971), Plastic Gijutsu Zensho, No. 15, K.K. Kogyo Chosakai, pages 16, 17	3-8, 12-13 1-2, 9-11
E, Y	EP, 10-279720, A (Nagoya Oilchemical Co., Ltd.), 20 October, 1998 (20. 10. 98) (Family: none)	1-13
X Y	JP, 10-51095, A (Hokuriku Electric Industry Co., Ltd.), 20 February, 1998 (20. 02. 98) & EP, 809424, A1	1-2, 5-9, 11  3-4, 10, 12-13
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 23 April, 1999 (23. 04. 99)		Date of mailing of the international search report 11 May, 1999 (11. 05. 99)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/00765

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-29260, A (Shin-Kobe Electric Machinery Co., Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	3 February, 1998 (03. 02. 98) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-199829, A (Hokuriku Electric Industry Co., Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	31 July, 1997 (31. 07. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-174546, A (Matsushita Electric Works, Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	8 July, 1997 (08. 07. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-59400, A (Matsushita Electric Works, Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	4 March, 1997 (04. 03. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 9-3745, A (Toray Industries, Inc.),	1-2, 5-9, 11
Y	7 January, 1997 (07. 01. 97) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 7-142633, A (Hitachi, Ltd.),	1-2, 5-9, 11
Y	2 June, 1995 (02. 06. 95) (Family: none)	3-4, 10, 12-13
X	JP, 6-143448, A (Shinko Kagaku Kogyo K.K.),	1-2, 5-9, 11
Y	24 May, 1994 (24. 05. 94) (Family: none)	3-4, 10, 12-13

# PCT

## REQUEST

The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty.

For receiving Office use only

International Application No.

International Filing Date

Name of receiving Office and "PCT International Application"

Applicant's or agent's file reference  
(if desired) (12 characters maximum) NOPCT-15

### Box No. I TITLE OF INVENTION

A MATERIAL TO BE MOLDED, AN INTERIOR MATERIAL, AND A MANUFACTURING METHOD OF SAID MATERIAL

### Box No. II APPLICANT

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (i.e. country) of residence if no State of residence is indicated below.)

NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD.  
213-5 Honowari, Minamishibata-cho,  
Tokai-shi, Aichi 476-0001 JAPAN

☐ This person is also inventor.

Telephone No.  
(0560)63-2611

Facsimile No.  
(052)603-2615

Teleprinter No.

State (i.e. country) of nationality:  
JAPAN

State (i.e. country) of residence:  
JAPAN

This person is applicant for the purposes of: ☐ all designated States ☒ all designated States except the United States of America ☐ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box

### Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (i.e. country) of residence if no State of residence is indicated below.)

HORIKI, Seinosuke  
c/o Nagoya Oilchemical Co., Ltd.  
213-5 Honowari, MINamishibata-cho, Tokai-shi,  
Aichi 476-0001 JAPAN

This person is:

☐ applicant only

☒ applicant and inventor

☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (i.e. country) of nationality:  
JAPAN

State (i.e. country) of residence:  
JAPAN

This person is applicant for the purposes of: ☐ all designated States ☐ all designated States except the United States of America ☒ the United States of America only ☐ the States indicated in the Supplemental Box

☒ Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.

### Box No. IV AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE

The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as: ☒ agent ☐ common representative

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.)

No. 7547 USAMI, Tadao  
No. 102, 32 Tsukimigaoka, Yatomi-cho,  
Mizuho-ku, Nagoya-shi, Aichi 467-0035 JAPAN

Telephone No.  
(052)831-0901

Facsimile No.  
(052)834-2330

Teleprinter No.

☐ Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the space above is used instead to indicate a special address to which correspondence should be sent.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANTS AND/OR (FURTHER) INVENTORS

If none of the following sub-boxes is used, this sheet is not to be included in the request.

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (i.e. country) of residence if no State of residence is indicated below.)

OGAWA, Masanori  
c/o Nagoya Oilchemical Co., Ltd.  
213-5 Honowari, Minamishibata-cho,  
Tokai-shi, Aichi 476-0001 JAPAN

This person is:

☐ applicant only☒ applicant and inventor☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (i.e. country) of nationality:

JAPAN

State (i.e. country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States☐ all designated States except the United States of America☒ the United States of America only☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (i.e. country) of residence if no State of residence is indicated below.)

KIOKA, Norihiko  
c/o Nagoya Oilchemical Co., Ltd.  
213-5 Honowari, Minamishibata-cho,  
Tokai-shi, Aichi 476-0001 JAPAN

This person is:

☐ applicant only☒ applicant and inventor☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (i.e. country) of nationality:

JAPAN

State (i.e. country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States☐ all designated States except the United States of America☒ the United States of America only☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (i.e. country) of residence if no State of residence is indicated below.)

KAJITA, Takehiko  
c/o Nagoya Oilchemical Co., Ltd.  
213-5 Honowari, Minamishibata-cho,  
Tokai-shi, Aichi 476-0001 JAPAN

This person is:

☐ applicant only☒ applicant and inventor☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (i.e. country) of nationality:

JAPAN

State (i.e. country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States☐ all designated States except the United States of America☒ the United States of America only☐ the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (i.e. country) of residence if no State of residence is indicated below.)

ITO, Kuninori  
c/o Nagoya Oilchemical Co., Ltd.  
213-5 Honowari, Minamishibata-cho,  
Tokai-shi, Aichi 476-0001 JAPAN

This person is:

☐ applicant only☒ applicant and inventor☐ inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (i.e. country) of nationality:

JAPAN

State (i.e. country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

☐ all designated States☐ all designated States except the United States of America☒ the United States of America only☐ the States indicated in the Supplemental Box☐ Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.

**THIS PAGE BLANK (USPT.**



**Box No.V DESIGNATION OF STATES**

The following designations are hereby made under Rule 4.9(a) (mark the applicable check-boxes; at least one must be marked):

**Regional Patent**

- ☐ **AP ARIPO Patent:** GH Ghana, KE Kenya, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SZ Swaziland, UG Uganda, ZW Zimbabwe, and any other State which is a Contracting State of the Harare Protocol and of the PCT
- ☐ **EA Eurasian Patent:** AM Armenia, AZ Azerbaijan, BY Belarus, KG Kyrgyzstan, KZ Kazakstan, MD Republic of Moldova, RU Russian Federation, TJ Tajikistan, TM Turkmenistan, and any other State which is a Contracting State of the Eurasian Patent Convention and of the PCT
- ☒ **EP European Patent:** AT Austria, BE Belgium, CH and LI Switzerland and Liechtenstein, DE Germany, DK Denmark, ES Spain, FI Finland, FR France, GB United Kingdom, GR Greece, IE Ireland, IT Italy, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Netherlands, PT Portugal, SE Sweden, and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT
- ☐ **OA OAPI Patent:** BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Central African Republic, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, CM Cameroon, GA Gabon, GN Guinea, ML Mali, MR Mauritania, NE Niger, SN Senegal, TD Chad, TG Togo, and any other State which is a member State of OAPI and a Contracting State of the PCT (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line)

**National Patent (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line):**

- |   |   |
|---|---|
| <input type="checkbox"/> AL Albania                               | <input type="checkbox"/> LV Latvia                                    |
| <input type="checkbox"/> AM Armenia                               | <input type="checkbox"/> MD Republic of Moldova                       |
| <input type="checkbox"/> AT Austria                               | <input type="checkbox"/> MG Madagascar                                |
| <input type="checkbox"/> AU Australia                             | <input type="checkbox"/> MK The former Yugoslav Republic of Macedonia |
| <input type="checkbox"/> AZ Azerbaijan                            |   |
| <input type="checkbox"/> BA Bosnia and Herzegovina                | <input type="checkbox"/> MN Mongolia                                  |
| <input type="checkbox"/> BB Barbados                              | <input type="checkbox"/> MW Malawi                                    |
| <input type="checkbox"/> BG Bulgaria                              | <input type="checkbox"/> MX Mexico                                    |
| <input type="checkbox"/> BR Brazil                                | <input type="checkbox"/> NO Norway                                    |
| <input type="checkbox"/> BY Belarus                               | <input type="checkbox"/> NZ New Zealand                               |
| <input checked="" type="checkbox"/> CA Canada                     | <input type="checkbox"/> PL Poland                                    |
| <input type="checkbox"/> CH and LI Switzerland and Liechtenstein  | <input type="checkbox"/> PT Portugal                                  |
| <input type="checkbox"/> CN China                                 | <input type="checkbox"/> RO Romania                                   |
| <input type="checkbox"/> CU Cuba                                  | <input type="checkbox"/> RU Russian Federation                        |
| <input type="checkbox"/> CZ Czech Republic                        | <input type="checkbox"/> SD Sudan                                     |
| <input type="checkbox"/> DE Germany                               | <input type="checkbox"/> SE Sweden                                    |
| <input type="checkbox"/> DK Denmark                               | <input type="checkbox"/> SG Singapore                                 |
| <input type="checkbox"/> EE Estonia                               | <input type="checkbox"/> SI Slovenia                                  |
| <input type="checkbox"/> ES Spain                                 | <input type="checkbox"/> SK Slovakia                                  |
| <input type="checkbox"/> FI Finland                               | <input type="checkbox"/> SL Sierra Leone                              |
| <input type="checkbox"/> GB United Kingdom                        | <input type="checkbox"/> TJ Tajikistan                                |
| <input type="checkbox"/> GE Georgia                               | <input type="checkbox"/> TM Turkmenistan                              |
| <input type="checkbox"/> GH Ghana                                 | <input type="checkbox"/> TR Turkey                                    |
| <input type="checkbox"/> HU Hungary                               | <input type="checkbox"/> TT Trinidad and Tobago                       |
| <input type="checkbox"/> IL Israel                                | <input type="checkbox"/> UA Ukraine                                   |
| <input type="checkbox"/> IS Iceland                               | <input type="checkbox"/> UG Uganda                                    |
| <input checked="" type="checkbox"/> JP Japan                      | <input checked="" type="checkbox"/> US United States of America       |
| <input type="checkbox"/> KE Kenya                                 |   |
| <input type="checkbox"/> KG Kyrgyzstan                            | <input type="checkbox"/> UZ Uzbekistan                                |
| <input type="checkbox"/> KP Democratic People's Republic of Korea | <input type="checkbox"/> VN Viet Nam                                  |
|   | <input type="checkbox"/> YU Yugoslavia                                |
| <input type="checkbox"/> KR Republic of Korea                     | <input type="checkbox"/> ZW Zimbabwe                                  |
| <input type="checkbox"/> KZ Kazakstan                             |   |
| <input type="checkbox"/> LC Saint Lucia                           |   |
| <input type="checkbox"/> LK Sri Lanka                             |   |
| <input type="checkbox"/> LR Liberia                               |   |
| <input type="checkbox"/> LS Lesotho                               |   |
| <input type="checkbox"/> LT Lithuania                             |   |
| <input type="checkbox"/> LU Luxembourg                            |   |

Check-boxes reserved for designating States (for the purposes of a national patent) which have become party to the PCT after issuance of this sheet:

- ☐ .....
- ☐ .....
- ☐ .....
- ☐ .....
- ☐ .....

In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all designations which would be permitted under the PCT except the designation(s) of .....

The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration of that time limit. (Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying that designation and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

<b>Box No. VI PRIORITY CLAIM</b>		Further priority claims are indicated in the Supplemental Box <input type="checkbox"/>	
The priority of the following earlier application(s) is hereby claimed:			
Country (in which, or for which, the application was filed)	Filing Date (day/month/year)	Application No.	Office of filing (only for regional or international application)
item (1) <div style="text-align: center;">JAPAN</div>	20/02/98	10-56090	
item (2)			
item (3)			
Mark the following check-box if the certified copy of the earlier application is to be issued by the Office which for the purposes of the present international application is the receiving Office (a fee may be required): <input checked="" type="checkbox"/> The receiving Office is hereby requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) identified above as item(s) : (1)			
<b>Box No. VII INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY</b>			
<b>Choice of International Searching Authority (ISA)</b> (If two or more International Searching Authorities are competent to carry out the international search, indicate the Authority chosen; the two-letter code may be used): ISA / _____			
<b>Earlier search</b> Fill in where a search (international, international-type or other) by the International Searching Authority has already been carried out or requested and the Authority is now requested to base the international search, to the extent possible, on the results of that earlier search. Identify such search or request either by reference to the relevant application (or the translation thereof) or by reference to the search request: Country (or regional Office): _____ Date (day/month/year): _____ Number: _____			
<b>Box No. VIII CHECK LIST</b>			
This international application contains the following number of sheets: 1. request : 4 sheets 2. description : 32 sheets 3. claims : 2 sheets 4. abstract : 1 sheets 5. drawings : 8 sheets Total : 47 sheets		This international application is accompanied by the item(s) marked below: 1. <input checked="" type="checkbox"/> separate signed power of attorney 2. <input type="checkbox"/> copy of general power of attorney 3. <input type="checkbox"/> statement explaining lack of signature 4. <input type="checkbox"/> priority document(s) identified in Box No. VI as item(s): 5. <input checked="" type="checkbox"/> fee calculation sheet 6. <input type="checkbox"/> separate indications concerning deposited microorganisms 7. <input type="checkbox"/> nucleotide and/or amino acid sequence listing (diskette) 8. <input checked="" type="checkbox"/> other (specify): a request for transmission of a certified copy	
Figure No. <u>6</u> of the drawings (if any) should accompany the abstract when it is published.			
<b>Box No. IX SIGNATURE OF APPLICANT OR AGENT</b>			
Next to each signature, indicate the name of the person signing and the capacity in which the person signs (if such capacity is not obvious from reading the request).			
No. 7547 USAMI Tadao			

For receiving Office use only	
1. Date of actual receipt of the purported international application: 3. Corrected date of actual receipt due to later but timely received papers or drawings completing the purported international application: 4. Date of timely receipt of the required corrections under PCT Article 11(2): 5. International Searching Authority specified by the applicant: ISA /	2. Drawings: <input type="checkbox"/> received: <input type="checkbox"/> not received: 6. <input type="checkbox"/> Transmittal of search copy delayed until search fee is paid

For International Bureau use only	
Date of receipt of the record copy by the International Bureau:	

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

E P



P C T

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)  
[PCT 18 条、PCT 規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 NOPCT-15	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP99/00765	国際出願日 (日.月.年) 19.02.99	優先日 (日.月.年) 20.02.98
出願人(氏名又は名称) 名古屋油化株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT 18 条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

#### 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT 規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 6 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>8</sup> C08J5/24, B32B5/28, B29B5/10 // B29K105:06

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>8</sup> C08J5/24, 9/04, C08G8/10, B32B5/28, B29B5/10, B29K105:06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
WPI (DIALOG)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P, 5-286069, A (松下電工株式会社), 2. 11月. 1993 (02. 11. 93) (ファミリーなし)	1-2, 5, 9-11 3-4, 6- 8, 12- 13
X Y A	J P, 4-16337, A (三井石油化学工業株式会社), 21. 1月. 1992 (21. 01. 92) (ファミリーなし)	1, 5, 9- 10 6-8 2-4, 11 -13

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23. 04. 99

国際調査報告の発送日

11.05.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

村上 騎見高

4 J

8827

電話番号 03-3581-1101 内線 6833

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	上中三男二編著、プラスチック技術全書第15巻「フェノール樹脂」(1971)第16～17頁、株式会社工業調査会	3-8, 12 -13 1-2, 9- 11
E, Y	J P, 10-279720, A (名古屋油化株式会社), 20. 1 0月. 1998 (20. 10. 98) (ファミリーなし)	1-13
X Y	J P, 10-51095, A (北陸電気工業株式会社), 20. 2 月. 1998 (20. 02. 98) & EP, 809424, A1	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13
X Y	J P, 10-29260, A (新神戸電機株式会社), 3. 2月. 1998 (03. 02. 98) (ファミリーなし)	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13
X Y	J P, 9-199829, A (北陸電気工業株式会社), 31. 7 月. 1997 (31. 07. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13
X Y	J P, 9-174546, A (松下電工株式会社), 8. 7月. 1 997 (08. 07. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13
X Y	J P, 9-59400, A (松下電工株式会社), 4. 3月. 19 97 (04. 03. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13
X Y	J P, 9-3745, A (東レ株式会社), 7. 1月. 1997 (07. 01. 97) (ファミリーなし)	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13
X Y	J P, 7-142633, A (株式会社日立製作所), 2. 6月. 1995 (02. 06. 95) (ファミリーなし)	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13
X Y	J P, 6-143448, A (新興化学工業株式会社), 24. 5 月. 1994 (24. 05. 94) (ファミリーなし)	1-2, 5- 9, 11 3-4, 10, 12- 13

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**